

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年9月27日 (27.09.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/71415 A1

(51) 国際特許分類: G02C 7/04, A61L 27/14, A61F 2/16,
C08J 5/00, C08L 290/06, C08F 2/48 // C08L 55:00

Masaki) [JP/JP]. 渡辺 剛 (WATANABE, Tsuyoshi)
[JP/JP]. 中田和彦 (NAKADA, Kazuhiko) [JP/JP]; 〒
487-0032 愛知県春日井市高森台五丁目1番地10 株式
会社 メニコン 総合研究所内 Aichi (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP01/02221

(22) 国際出願日: 2001年3月21日 (21.03.2001)

(74) 代理人: 朝日奈宗太, 外 (ASAHINA, Sohta et al.); 〒
540-0012 大阪府大阪市中央区谷町二丁目2番22号 NS
ビル Osaka (JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(81) 指定国 (国内): JP, US.

(30) 優先権データ:
特願2000-79862 2000年3月22日 (22.03.2000) JP

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社
メニコン (MENICON CO., LTD.) [JP/JP]; 〒460-0006
愛知県名古屋市中区葵三丁目21番19号 Aichi (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 馬場雅樹 (BABA,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: MATERIAL FOR OCULAR LENS

(54) 発明の名称: 眼用レンズ材料

(57) Abstract: An ocular-lens material which comprises a copolymer obtained by polymerizing polymerizable ingredients consisting mainly of a polysiloxane macromonomer (A), a silicon-containing alkyl methacrylate (B), hydrophilic monomers (C) consisting of NVP (C-1) and other hydrophilic monomer (C-2), other monomer(s) (D), and low-molecular crosslinking monomers (E) consisting of a crosslinking monomer (E-1) having an acryloyl, vinyl, or allyl group and a methacryloyl group and a crosslinking monomer (E-2) having two or more methacryloyl groups by the casting method with heating and ultraviolet irradiation, wherein [(A)+(B)]/(C) (by weight) is 30/70 to 70/30, (A)/(B) is 25/75 to 75/25, (C-1)/(C-2) is 50/50 to 100/0, and (D) accounts for 0 to 20 wt.% of the polymerizable ingredients. The ocular-lens material has high permeability to oxygen and high mechanical strength. The surface of the material has excellent wettability by water and low-friction properties.

[続葉有]

WO 01/71415 A1



(57) 要約:

ポリシロキサンマクロモノマーA、Si含有アルキルメタクリレートB、NVPであるC-1と他の親水性モノマーC-2とである親水性モノマーC、他のモノマーD及びアクリロイル、ビニル又はアリル基とメタクリロイル基含有架橋性モノマーE-1と2以上のメタクリロイル基含有架橋性モノマーE-2とである低分子架橋性モノマーEを主成分とした重合成分を加熱、紫外線照射して鋳型法にて重合させた共重合体からなり、 $(A+B)/C$ (重量比) が $30/70 \sim 70/30$ 、 A/B が $25/75 \sim 75/25$ 、 $C-1/C-2$ が $50/50 \sim 100/0$ 、Dが重合成分の $0 \sim 20$ 重量%であり、高酸素透過性及び高機械的強度を有し、表面水濡れ性に優れ、表面が低摩擦性の眼用レンズ材料。

明 細 書

眼用レンズ材料

技術分野

本発明は、眼用レンズ材料に関する。さらに詳しくは、高酸素透過性および高機械的強度を有することに加え、さらに表面水濡れ性にすぐれ、かつ表面が低摩擦性であり、コンタクトレンズ、眼内レンズ、人工角膜などに好適に使用し得る眼用レンズ材料に関する。

背景技術

従来、装用感のよいコンタクトレンズ材料や、眼組織に傷を付けずに眼球を小さく切開するだけで変形して挿入することができる眼内レンズ材料として、一般に軟質材料が好適である。

前記軟質材料としては、水を吸収して膨潤し、軟質化する含水性の材料と、実質的に非含水性の材料とがあるが、かかる含水性の材料は酸素透過性が含水率に依存し、その酸素透過係数が水の酸素透過係数よりも大きくなることはない。

含水性であり、かつ酸素透過性にすぐれたコンタクトレンズを得る材料として、たとえばシリコーンを含有するハイドロゲル（以下、シリコーンハイドロゲルという）があげられる（特開平 3 - 1 7 9 4 2 2 号公報、特開平 3 - 1 9 6 1 7 7 号公報および特開平 3 - 1 9 6 1 1 8 号公報）。かかるシリコーンハイドロゲルが酸素透過性にすぐれるのは、水よりも高い酸素透過性を有するから

である。

また前記シリコーンハイドロゲルは疎水性成分を含有してなるものであるので、材料表面の水濡れ性に劣り、かかる材料を成形した場合には表面の粘着性が大きくなる。さらに材料の酸素透過性をより向上させるためにシリコン含有モノマーの量を増加させると、得られる材料がセミハードとなるため、かかる材料を用いて装用感のよいコンタクトレンズや、眼球を小さく切開するだけで挿入することができる眼内レンズを得ることは困難である。また勿論、かかる眼用レンズを装用、装着した場合、装用感がわるくなり、加えて疎水性が大きいことから脂質などの付着物が増大するといった欠点がある。ところが、前記材料の装用感を向上させるために親水性成分を多用すれば、当然材料の酸素透過性が含水率に依存することになってしまう。

眼用レンズに最適なハイドロゲル材料は、高酸素透過性や理想的な剛性のほか、高水濡れ性を有し、摩擦性が低いものである。これは高水濡れ性および低摩擦性によってレンズの滑りが保持され、眼の上でレンズを快適に装用することができるからである。そこで、材料の水濡れ性を向上させ、摩擦性を低下させるために、たとえば以下に示す方法などが提案されている。

米国特許第4099859号明細書には、コンタクトレンズ表面を親水性モノマーで被覆し、こののち紫外線を照射することによりシリコーンゴム製コンタクトレンズ材料の表面に親水性ポリマーをグラフトさせる方法が開示されている。また米国特許第4143949号明細書には、放射線重合にて疎水性コンタクトレンズ上に親

水性被膜を施す方法が、さらに米国特許第4311573号明細書および米国特許第4589964号明細書には、オゾン処理ののち生成ペルオキシ基の分解によるビニルモノマーのグラフトを行ない、疎水性ポリマーの表面を親水化する方法がそれぞれ開示されている。これら以外にも、特許第2898664号公報には、架橋シロキサン-ウレタンポリマーを、親水性ビニルポリマーとの相互貫入網状ポリマー（一般に、IPNという）の形態で得ることが開示されている。

しかしながら、前記いずれの方法も、その工程が複雑であったり、すべてのレンズを均一に処理することや処理の程度を確認することが困難であったり、あるいは原料の製造が困難であるなど、種々の問題点を有するものであり、眼用レンズに最適な目的とするハイドロゲル材料を容易に得ることが困難である。

さらに前記のほかにも、つぎのような各種材料が提案されている。

たとえば特開昭54-22487号公報には、水溶性単量体およびメチルメタクリレートなどの水不溶性モノオレフィン性単量体20～90重量%と、疎水性シロキサンマクロマー10～80重量%との架橋共重合反応生成物からなる水不溶性親水性ゲルが、特開昭55-500418号公報には、アミド基含有モノマー15～65重量%、有機ケイ素化合物10～75重量%およびアルカノールと（メタ）アクリル酸とのエステル0.1～65重量%からなるコモノマーのコポリマーである親水性で水和後の柔軟性および酸素透過性が向上した組成物が、特開平4-46311号公報には、有機シロキサンオリ

ゴマー (I) と (メタ) アクリレート系モノマー (II) とを 2.0 ~ 2.6 モル比 ((II) / (I)) で混合し、さらにジイソシアネートを反応させて得られるマクロマーと、他のモノマーとを重合させたポリシロキサン系コンタクトレンズが、特開平 6-121826 号公報には、ポリシロキサンマクロモノマーとアルキル (メタ) アクリルアミドとを主成分とし、両者の重量比 (ポリシロキサンマクロモノマー / アルキル (メタ) アクリルアミド) を 5 / 95 ~ 90 / 10 とした共重合体からなる眼用レンズ材料がそれぞれ開示されている。

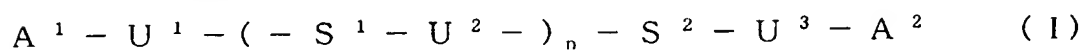
前記のごとき各種ゲル、組成物、コンタクトレンズおよび材料は、いずれもケイ素 (とくにシリコン) 含有成分を用いて得られたものであることから、酸素透過性にはすぐれるものの、その表面水濡れ性はそれほどでもなく、また摩擦性も十分に低いとはいえず、高酸素透過性、高表面水濡れ性および低摩擦性を同時に満足する材料とはいえない。

本発明は前記従来技術に鑑みてなされたものであり、高酸素透過性および高機械的強度を有することに加え、さらに表面水濡れ性にもすぐれ、かつ表面が低摩擦性の眼用レンズ材料を提供することを目的とする。

発明の開示

本発明は、

(A) 一般式 (I) :

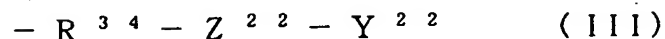


[式中、 A^1 は一般式 (II) :



(式中、 Y^{21} はアクリロイル基、ビニル基またはアリル基、 Z^{21} は酸素原子または直接結合、 R^{31} は直接結合または炭素数1～12の直鎖状、分岐鎖もしくは芳香環を有するアルキレン基を示す)で表わされる基；

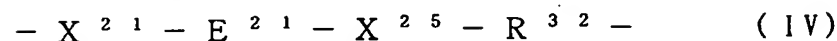
A^2 は一般式(III)：



(式中、 Y^{22} はアクリロイル基、ビニル基またはアリル基、 Z^{22} は酸素原子または直接結合、 R^{34} は直接結合または炭素数1～12の直鎖状、分岐鎖もしくは芳香環を有するアルキレン基を示す)で表わされる基。

(ただし、一般式(II)中の Y^{21} および一般式(III)中の Y^{22} は同一であってもよく、異なってもよい)；

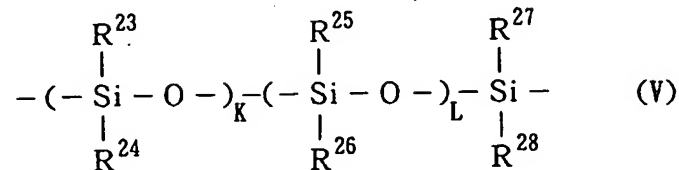
U^1 は一般式(IV)：



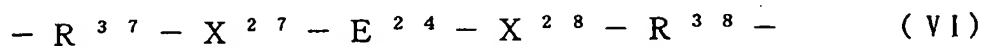
(式中、 X^{21} および X^{25} はそれぞれ独立して直接結合、酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、 E^{21} は $-NHCO-$ 基(ただし、この場合、 X^{21} は直接結合であり、 X^{25} は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 E^{21} は X^{25} とウレタン結合を形成している)、 $-CONH-$ 基(ただし、この場合、 X^{21} は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 X^{25} は直接結合であり、 E^{21} は X^{21} とウレタン結合を形成している)または飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の2価の基(ただし、この場合、 X^{21} および X^{25} はそれぞれ独立して酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、 E^{21} は X^{21} および X^{25} のあいだで2つのウレタン結合を形成している)； R^{32} は炭素数1～6の直鎖

状または分岐鎖を有するアルキレン基を示す) で表わされる基 ;

S¹ および S² はそれぞれ独立して一般式 (V) :

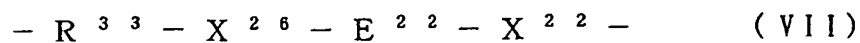


(式中、R²³、R²⁴、R²⁵、R²⁶、R²⁷ および R²⁸ はそれぞれ独立して炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、フッ素置換されたアルキル基またはフェニル基、K は 1 ~ 1500 の整数、L は 0 または 1 ~ 1499 の整数であり、K + L は 1 ~ 1500 の整数である) で表わされる基 ;
U² は一般式 (VI) :



(式中、R³⁷ および R³⁸ はそれぞれ独立して炭素数 1 ~ 6 の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基 ; X²⁷ および X²⁸ はそれぞれ独立して酸素原子またはアルキレングリコール基 ; E²⁴ は飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の 2 価の基 (ただし、この場合、E²⁴ は X²⁷ および X²⁸ のあいだで 2 つのウレタン結合を形成している) で表わされる基 ;

U³ は一般式 (VII) :



(式中、R³³ は炭素数 1 ~ 6 の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基、X²² および X²⁶ はそれぞれ独立して直接結合、酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、E²² は -NHCO- 基 (ただし、この場合、

$X^{2,2}$ は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 $X^{2,6}$ は直接結合であり、 $E^{2,2}$ は $X^{2,2}$ とウレタン結合を形成している）、 $-CONH-$ 基（ただし、この場合、 $X^{2,2}$ は直接結合であり、 $X^{2,6}$ は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 $E^{2,2}$ は $X^{2,6}$ とウレタン結合を形成している）または飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の 2 価の基（ただし、この場合、 $X^{2,2}$ および $X^{2,6}$ はそれぞれ独立して酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、 $E^{2,2}$ は $X^{2,2}$ および $X^{2,6}$ のあいだで 2 つのウレタン結合を形成している）で表わされる基； n は 0 または 1 ～ 10 の整数を示す] で表わされる重合性基が 1 個以上のウレタン結合を介してシロキサン主鎖に結合しているポリシロキサンマクロモノマー、

(B) シリコン含有アルキルメタクリレート、

(C) N-ビニルピロリドン (C-1) と、該 N-ビニルピロリドン (C-1) 以外のアクリロイル基、ビニル基またはアリル基を含有した親水性モノマー (C-2) とからなる親水性モノマー、

(D) アルキル (メタ) アクリレートおよびフッ素含有アルキル (メタ) アクリレートから選ばれた少なくとも 1 種のモノマー、ならびに

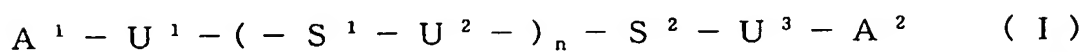
(E) アクリロイル基、ビニル基およびアリル基から選ばれた少なくとも 1 種の基とメタクリロイル基とを含む架橋性モノマー (E-1) と、少なくとも 2 つのメタクリロイル基を含む架橋性モノマー (E-2) とからなる低分子架橋性モノマー

を主成分とした重合成分を加熱および／または紫外線照

射して鋳型法にて重合させた共重合体からなり、
 前記ポリシロキサンマクロモノマー（A）およびシリコン含有アルキルメタクリレート（B）の合計と親水性モノマー（C）との割合〔（A）および（B）の合計／（C）（重量比）〕が30／70～70／30であり、かつ
 前記ポリシロキサンマクロモノマー（A）とシリコン含有アルキルメタクリレート（B）との割合〔（A）／（B）（重量比）〕が25／75～75／25であり、かつ
 前記N－ビニルピロリドン（C－1）と親水性モノマー（C－2）との割合〔（C－1）／（C－2）（重量比）〕が50／50～100／0であり、かつ
 前記モノマー（D）の量が重合成分の0～20重量％である眼用レンズ材料に関する。

発明を実施するための最良の形態

本発明の眼用レンズ材料は、一般式（I）：



（式中、 A^1 、 A^2 、 U^1 、 U^2 、 U^3 、 S^1 、 S^2 およびnはそれぞれ前記と同じ）で表わされるポリシロキサンマクロモノマー（A）、シリコン含有アルキルメタクリレート（B）、N－ビニルピロリドン（C－1）と該N－ビニルピロリドン（C－1）以外のアクリロイル基、ビニル基またはアリル基を含有した親水性モノマー（C－2）とからなる親水性モノマー（C）、アルキル（メタ）アクリレートおよびフッ素含有アルキル（メタ）アクリレートから選ばれた少なくとも1種のモノマー（D）、ならびにアクリロイル基、ビニル基およびアリル基から

選ばれた少なくとも 1 種の基とメタクリロイル基とを含む架橋性モノマー (E-1) と、少なくとも 2 つのメタクリロイル基を含む架橋性モノマー (E-2) とからなる低分子架橋性モノマー (E) を主成分とした重合成分を加熱および／または紫外線照射して鋳型法にて重合させた共重合体からなるものである。

前記ポリシロキサンマクロモノマー (A) は、ウレタン結合という弾性力のある結合を有し、シロキサン部分により材料の柔軟性や酸素透過性を損なうことなく補強し、かつ弾力的反発性を付与して脆さをなくし、機械的強度を向上させるという性質を付与する成分である。またポリシロキサンマクロモノマー (A) は、分子鎖中にシリコーン鎖を有するので、高酸素透過性を付与するのである。

ポリシロキサンマクロモノマー (A) は、分子の両末端に重合性基を有し、かかる重合性基を介して他の共重合成分を共重合するため、得られる眼用レンズ材料に分子の絡み合いによる物理的な補強効果だけでなく、化学的結合 (共有結合) による補強効果を付与するというすぐれた性質を有するものである。すなわち、ポリシロキサンマクロモノマー (A) は高分子架橋性モノマーとして作用するものである。

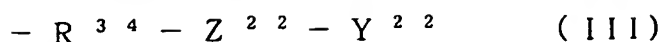
ポリシロキサンマクロモノマー (A) は、一般式 (I) で表わされる化合物である。

一般式 (I) において、 A^1 は、前記したように、一般式 (II) :



(式中、 Y^{21} 、 Z^{21} および R^{31} は前記と同じ) で表わ

される基であり、また A^2 は一般式 (III) :



(式中、 Y^{22} 、 Z^{22} および R^{34} は前記と同じ) で表わされる基である。

Y^{21} および Y^{22} は、いずれも重合性基であるが、親水性モノマー (C) と容易に共重合するという点で、アクリロイル基がとくに好ましい。

Z^{21} および Z^{22} は、いずれも酸素原子または直接結合であり、好ましくは酸素原子である。

R^{31} および R^{34} は、いずれも直接結合または炭素数 1 ~ 1.2 の直鎖状、分岐鎖もしくは芳香環を有するアルキレン基であり、好ましくはエチレン基、プロピレン基、ブチレン基である。

U^1 、 U^2 および U^3 は、いずれもポリシロキサンマクロモノマー (A) の分子鎖中でウレタン結合を含む基を表わす。

U^1 および U^3 において、 E^{21} および E^{22} は、前記したように、それぞれ $-CONH-$ 基、 $-NHCO-$ 基または飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の 2 価の基を表わす。ここで、飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の 2 価の基としては、たとえばエチレンジイソシアネート、1, 3-ジイソシアネートプロパン、ヘキサメチレンジイソシアネートなどの飽和脂肪族系ジイソシアネート由来の 2 価の基；1, 2-ジイソシアネートシクロヘキサン、ビス(4-イソシアネートシクロヘキシル)メタン、イソホロレンジイソシアネートなどの脂環式系ジ

イソシアネート由来の2価の基；トリレンジイソシアネート、1,5-ジイソシアネートナフタレンなどの芳香族系ジイソシアネート由来の2価の基；2,2'-ジイソシアネートジエチルフマレートなどの不飽和脂肪族系ジイソシアネート由来の2価の基があげられるが、これらのなかでは、比較的入手しやすく、かつ強度を付与しやすいので、ヘキサメチレンジイソシアネート由来の2価の基、トリレンジイソシアネート由来の2価の基およびイソホロンジイソシアネート由来の2価の基が好ましい。

U¹において、E^{2 1}が-NHCO-基である場合には、X^{2 1}は直接結合であり、X^{2 5}は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、E^{2 1}はX^{2 5}と式：-NHCOO-で表わされるウレタン結合を形成する。またE^{2 1}が-CONH-基である場合には、X^{2 1}は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、X^{2 5}は直接結合であり、E^{2 1}はX^{2 1}と式：-OCONH-で表わされるウレタン結合を形成する。さらにE^{2 1}が前記ジイソシアネート由来の2価の基である場合には、X^{2 1}およびX^{2 5}はそれぞれ独立して酸素原子および好ましくは炭素数1～6のアルキレングリコール基から選ばれ、E^{2 1}はX^{2 1}とX^{2 5}とのあいだで2つのウレタン結合を形成している。R^{3 2}は炭素数1～6の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基である。

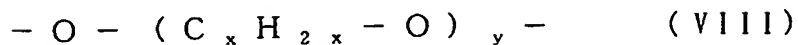
U²において、E^{2 4}は、前記したように、飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の2価の基を表わす。ここで、飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香

族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の2価の基としては、たとえば前記 U^1 および U^3 における場合と同様の2価の基があげられるが、これらのなかでは、比較的手に入りやすく、かつ強度を付与しやすいので、ヘキサメチレンジイソシアネート由来の2価の基、トリレンジイソシアネート由来の2価の基およびイソホロンジイソシアネート由来の2価の基が好ましい。また $E^{2,4}$ は $X^{2,7}$ と $X^{2,8}$ とのあいだで2つのウレタン結合を形成している。 $X^{2,7}$ および $X^{2,8}$ はそれぞれ独立して酸素原子または好ましくは炭素数1～6のアルキレングリコール基であり、また $R^{3,7}$ および $R^{3,8}$ はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基である。

U^3 において、 $R^{3,3}$ は炭素数1～6の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基である。 $E^{2,2}$ が $-NHCOO-$ 基である場合には、 $X^{2,2}$ は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 $X^{2,6}$ は直接結合であり、 $E^{2,2}$ は $X^{2,2}$ と式： $-NHCOO-$ で表わされるウレタン結合を形成する。また $E^{2,2}$ が $-CONH-$ 基である場合には、 $X^{2,2}$ は直接結合であり、 $X^{2,6}$ は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 $E^{2,2}$ は $X^{2,6}$ と式： $-OCONH-$ で表わされるウレタン結合を形成する。さらに $E^{2,2}$ が前記ジイソシアネート由来の2価の基である場合には、 $X^{2,2}$ および $X^{2,6}$ はそれぞれ独立して酸素原子および好ましくは炭素数1～6のアルキレングリコール基から選ばれ、 $E^{2,2}$ は $X^{2,2}$ と $X^{2,6}$ とのあいだで2つのウレタン結合を形成している。

ここで、前記 $X^{2,1}$ 、 $X^{2,5}$ 、 $X^{2,7}$ 、 $X^{2,8}$ 、 $X^{2,2}$ およ

び X^{26} における好ましくは炭素数 1 ~ 6 のアルキレングリコールとしては、たとえば一般式 (VIII) :



(式中、 x は 1 ~ 4 の整数、 y は 1 ~ 5 の整数を示す) で表わされる基などがあげられる。なお、かかる一般式 (VIII) において、 y が 6 以上の整数である場合には、酸素透過性が低下したり、機械的強度が低下する傾向があるため、本発明においては y は 1 ~ 5 の整数、とくに 1 ~ 3 の整数であることが好ましい。

S^1 および S^2 はいずれも、前記したように、一般式 (V) で表わされる基である。

一般式 (V) において、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} および R^{28} は、前記したように、それぞれ独立して炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、フッ素置換されたアルキル基またはフェニル基である。

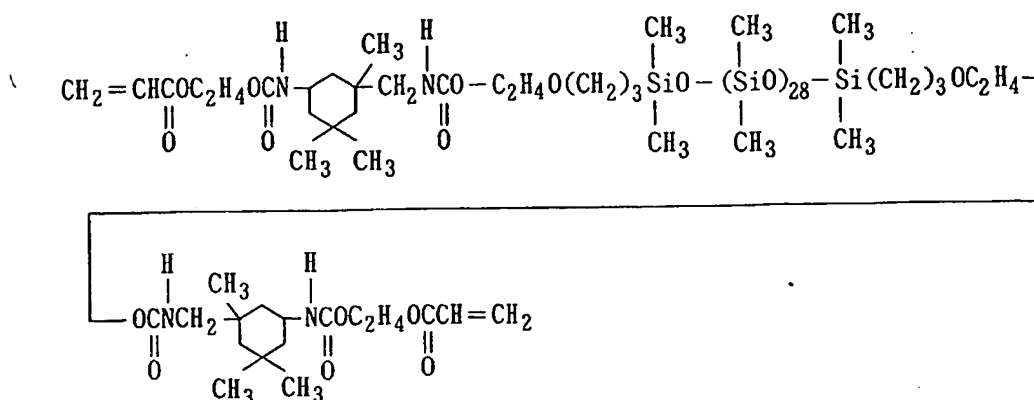
前記フッ素置換されたアルキル基の具体例としては、たとえば 3, 3, 3-トリフルオロ- n -プロピル基、3, 3, 3-トリフルオロイソプロピル基、3, 3, 3-トリフルオロ- n -ブチル基、3, 3, 3-トリフルオロイソブチル基、3, 3, 3-トリフルオロ-sec-ブチル基、3, 3, 3-トリフルオロ- t -ブチル基、3, 3, 3-トリフルオロ- n -ペンチル基、3, 3, 3-トリフルオロイソペンチル基、3, 3, 3-トリフルオロチオペンチル基、3, 3, 3-トリフルオロヘキシル基などがあげられる。なお本発明においては、かかるフッ素置換されたアルキル基を有するポリシロキサンマクロモノマー (A) を用い、その配合量を多くすると、得られる眼用レンズ材料の抗脂質汚染性が向上する傾向

がある。

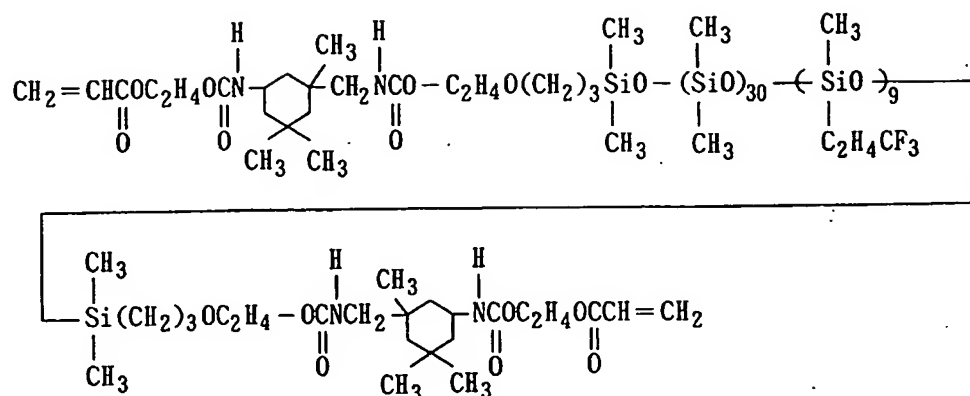
また、Kは1～1500の整数、Lは0または1～1499の整数であり、K+Lは1～1500の整数である。K+Lは、1500よりも大きい場合には、ポリシロキサンマクロモノマー(A)の分子量が大きくなり、これと親水性モノマー(C)との相溶性がわるくなり、配合時に十分に溶解しなかったり、重合時に白濁し、均一で透明な眼用レンズ材料が得られなくなる傾向があり、また0である場合には、得られる眼用レンズ材料の酸素透過性が低くなるばかりでなく、柔軟性も低下する傾向がある。K+Lは、好ましくは2～1000、さらに好ましくは3～500の整数である。

さらに n は 0 または 1 ~ 10 の整数であるが、 n が 10 よりも大きい場合には、ポリシロキサンマクロモノマー (A) の分子量が大きくなり、親水性モノマー (C) との相溶性がわるくなり、配合時に十分に溶解しなかったり、重合時に白濁し、均一で透明な眼用レンズ材料が得られなくなる傾向がある。 n は好ましくは 0 または 1 ~ 5 の整数である。

ポリシロキサンマクロモノマー (A) の代表例として
は、たとえば式：



で表わされるマクロモノマー（以下、マクロモノマー（A-1）という）、式：



で表わされるマクロモノマー（以下、マクロモノマー（A-2）という）などがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

前記シリコン含有アルキルメタクリレート（B）は、得られる眼用レンズ材料の酸素透過性をさらに向上させる成分である。

本発明において、ポリシロキサンマクロモノマー（A）中の重合性基、すなわち一般式（I）のA¹を表わす一般式（II）中のY^{2 1}および一般式（I）のA²を表わす一般式（III）中のY^{2 2}が、いずれもアクリロイル基、ビニル基およびアリル基から選ばれた基であるのに対し、かかるシリコン含有アルキルメタクリレート（B）中の重合性基がメタクリロイル基であることが、大きな特徴の1つである。このようにポリシロキサンマクロモノマー（A）とシリコン含有アルキルメタクリレート（B）とが互いに異なる重合性基を有するので、シリコーンセグメントがブロック的に主鎖に導入され、後述する親水性モノマー（C）由来の親水性セグメントがシリコーンセグメント中にブロック的に導入され得る。またポリシ

ロキサンマクロモノマー(A)および親水性モノマー(C)は、ともにアクリロイル基、ビニル基およびアリル基から選ばれた重合性基を有するので、効果的に共重合させることができる。ポリシロキサンマクロモノマー(A)とシリコン含有アルキルメタクリレート(B)とが同一の重合性基を有する場合には、どちらもシリコン含有成分であるため、とくに大きなドメインを形成してしまうという問題がある。

シリコン含有アルキルメタクリレート(B)の代表例としては、たとえばトリメチルシロキシジメチルシリルメチルメタクリレート、トリメチルシロキシジメチルシリルプロピルメタクリレート、メチルビス(トリメチルシロキシ)シリルプロピルメタクリレート、トリス(トリメチルシロキシ)シリルプロピルメタクリレート、モノ[メチルビス(トリメチルシロキシ)シロキシ]ビス(トリメチルシロキシ)シリルプロピルメタクリレート、トリス[メチルビス(トリメチルシロキシ)シロキシ]シリルプロピルメタクリレート、メチルビス(トリメチルシロキシ)シリルプロピルグリセリルメタクリレート、トリス(トリメチルシロキシ)シリルプロピルグリセリルメタクリレート、モノ[メチルビス(トリメチルシロキシ)シロキシ]ビス(トリメチルシロキシ)シリルプロピルグリセリルメタクリレート、トリメチルシリルエチルテトラメチルジシロキシプロピルグリセリルメタクリレート、トリメチルシリルメチルメタクリレート、トリメチルシリルプロピルメタクリレート、トリメチルシリルプロピルグリセリルメタクリレート、トリメチルシロキシジメチルシリルプロピルグリセリルメタクリレ-

ト、メチルビス（トリメチルシロキシ）シリルエチルテトラメチルジシロキシメチルメタクリレート、テトラメチルトリイソプロピルシクロテトラシロキサニルプロピルメタクリレート、テトラメチルトリイソプロピルシクロテトラシロキシビス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルメタクリレートなどがあげられ、これらは単独でまたは２種以上を混合して用いることができる。

前記親水性モノマー（Ｃ）は、得られる眼用レンズ材料に柔軟性および表面水濡れ性を付与し、装用感を向上させ、しかも低摩擦性を付与する成分である。

本発明において、親水性モノマー（Ｃ）として、Ｎ－ビニルピロリドン（Ｃ－１）と、該Ｎ－ビニルピロリドン（Ｃ－１）以外のアクリロイル基、ビニル基またはアリル基を含有した親水性モノマー（Ｃ－２）とが併用されることも、大きな特徴の１つである。すなわち、Ｎ－ビニルピロリドン（Ｃ－１）のみでは、ポリシロキサンマクロモノマー（Ａ）およびシリコン含有アルキルメタクリレート（Ｂ）といったシリコン含有成分との相溶性がわるく、得られる眼用レンズ材料の透明性が低下してしまうが、同時に前記親水性モノマー（Ｃ－２）を用いることにより、シリコン含有成分との相溶性が向上する。一方Ｎ－ビニルピロリドン（Ｃ－１）を用いない場合には、眼用レンズ材料に所望の低摩擦性、易潤滑性および耐汚染性が付与され得ない。これらのことから、Ｎ－ビニルピロリドン（Ｃ－１）と親水性モノマー（Ｃ－２）との併用が必須とされ、しかも該親水性モノマー（Ｃ－２）の重合性基は、Ｎ－ビニルピロリドン（Ｃ－１）との共重合性を考慮してアクリロイル基、ビニル基または

アリル基である。

親水性モノマー（C-2）の代表例としては、たとえばアクリルアミド、N，N-ジメチルアクリルアミド、N，N-ジエチルアクリルアミド、N，N-ジメチルミノプロピルアクリルアミド、N-イソプロピルアクリルアミド、アクリロイルモルホリンなどのアクリルアミド系モノマー；2-ヒドロキシエチルアクリレート、ヒドロキシプロピルアクリレート、ヒドロキシブチルアクリレートなどのヒドロキシアルキルアクリレート；2-ジメチルアミノエチルアクリレート、2-ブチルアミノエチルアクリレートなどの（アルキル）アミノアルキルアクリレート；エチレングリコールモノアクリレート、プロピレングリコールモノアクリレートなどのアルキレングリコールモノアクリレート；ポリエチレングリコールモノアクリレート、ポリプロピレングリコールモノアクリレートなどのポリアルキレングリコールモノアクリレート；エチレングリコールアリルエーテル；エチレングリコールビニルエーテル；アクリル酸；アミノスチレン；ヒドロキシスチレン；酢酸ビニル；グリシジルアクリレート；アリルグリシジルエーテル；プロピオン酸ビニル；N-ビニル-3-メチル-2-ピロリドン、N-ビニル-4-メチル-2-ピロリドン、N-ビニル-5-メチル-2-ピロリドン、N-ビニル-6-メチル-2-ピロリドン、N-ビニル-3-エチル-2-ピロリドン、N-ビニル-4，5-ジメチル-2-ピロリドン、N-ビニル-5，5-ジメチル-2-ピロリドン、N-ビニル-3，3，5-トリメチル-2-ピロリドン、N-ビニル-2-ピペリドン、N-ビニル-3-メチル-

2-ピペリドン、N-ビニル-4-メチル-2-ピペリドン、N-ビニル-5-メチル-2-ピペリドン、N-ビニル-6-メチル-2-ピペリドン、N-ビニル-6-エチル-2-ピペリドン、N-ビニル-3, 5-ジメチル-2-ピペリドン、N-ビニル-4, 4-ジメチル-2-ピペリドン、N-ビニル-2-カプロラクタム、N-ビニル-3-メチル-2-カプロラクタム、N-ビニル-4-メチル-2-カプロラクタム、N-ビニル-7-メチル-2-カプロラクタム、N-ビニル-7-エチル-2-カプロラクタム、N-ビニル-3, 5-ジメチル-2-カプロラクタム、N-ビニル-4, 6-ジメチル-2-カプロラクタム、N-ビニル-3, 5, 7-トリメチル-2-カプロラクタムなどのN-ビニルラクタム；N-ビニルホルムアミド、N-ビニル-N-メチルホルムアミド、N-ビニル-N-エチルホルムアミド、N-ビニルアセトアミド、N-ビニル-N-メチルアセトアミド、N-ビニル-N-エチルアセトアミド、N-ビニルフタルイミドなどのN-ビニルアミドなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

前記親水性モノマー（C-2）のなかでは、シリコン含有成分との相溶性によりすぐれるという点から、アクリルアミド、N, N-ジメチルアクリルアミド、N, N-ジエチルアクリルアミド、N-イソプロピルアクリルアミド、アクリロイルモルホリン、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ジメチルアミノエチルアクリレートおよび酢酸ビニルから選ばれた少なくとも1種が好ましく、とくにN, N-ジメチルアクリルアミドが好まし

い。

なおたとえば酢酸ビニルなどの酸や塩基によって加水分解を受ける成分を用いた系においては、眼用レンズを製造したのちに酸や塩基にて処理することにより、眼用レンズにさらなる柔軟性および表面水濡れ性を付与することができる。

N-ビニルピロリドン(C-1)と親水性モノマー(C-2)との割合[(C-1)/(C-2)(重量比)]は、N-ビニルピロリドン(C-1)が少ない場合、眼用レンズ材料の表面水濡れ性および低摩擦性が損なわれるおそれがあるので、50/50以上、好ましくは55/45以上、さらに好ましくは60/40以上であり、またN-ビニルピロリドン(C-1)が多い場合、重合系が白濁し、眼用レンズ材料の透明性が低下するほか、材料自体の硬度が高くなり、装用感に悪影響を与えるおそれがあるので、100/0以下、好ましくは95/5以下、さらに好ましくは90/10以下である。

本発明の眼用レンズ材料を得る際の必須成分であるポリシロキサンマクロモノマー(A)、シリコン含有アルキルメタクリレート(B)および親水性モノマー(C)の割合は、それぞれ以下のように設定される。

ポリシロキサンマクロモノマー(A)およびシリコン含有アルキルメタクリレート(B)の合計と親水性モノマー(C)との割合[(A)および(B)の合計/(C)(重量比)]は、親水性モノマー(C)が多い場合、眼用レンズ材料の酸素透過性が含水率に依存してしまい、高い酸素透過性を得ることが不可能となるので、30/70以上、好ましくは35/65以上、さらに好ましく

は 40 / 60 以上であり、またポリシロキサンマクロモノマー (A) およびシリコン含有アルキルメタクリレート (B) の合計が多い場合、眼用レンズ材料の柔軟性が失われ、硬くごわついた感触の材料または表面のべたついた材料となり、装用感に悪影響を与えるので、70 / 30 以下、好ましくは 67 / 33 以下、さらに好ましくは 65 / 35 以下である。

前記ポリシロキサンマクロモノマー (A) およびシリコン含有アルキルメタクリレート (B) の合計と親水性モノマー (C) との割合 [(A) および (B) の合計 / (C) (重量比)] と同時に要求される条件として、ポリシロキサンマクロモノマー (A) とシリコン含有アルキルメタクリレート (B) との割合 [(A) / (B) (重量比)] は、シリコン含有アルキルメタクリレート (B) が多い場合、眼用レンズ材料表面のべたつきが顕著になり、また材料の形状保持性が低下するので、25 / 75 以上、好ましくは 30 / 70 以上、さらに好ましくは 35 / 65 以上であり、またポリシロキサンマクロモノマー (A) が多い場合、眼用レンズ材料の柔軟性が失われ、硬く脆くなるので、75 / 25 以下、好ましくは 73 / 27 以下、さらに好ましくは 70 / 30 以下である。

得られる眼用レンズ材料にさらに所望の特性を付与しようとする場合には、モノマー (D) が用いられる。

前記モノマー (D) はアルキル (メタ) アクリレートおよびフッ素含有アルキル (メタ) アクリレートから選ばれた少なくとも 1 種である。

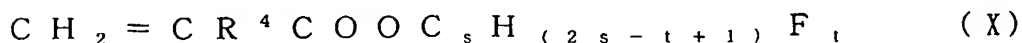
アルキル (メタ) アクリレートは、眼用レンズ材料の硬度を調節して硬質性や軟質性を付与する成分である。

アルキル（メタ）アクリレートの代表例としては、たとえばメチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、*n*-プロピル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、*n*-ブチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、*n*-オクチル（メタ）アクリレート、*n*-デシル（メタ）アクリレート、*n*-ドデシル（メタ）アクリレート、*t*-ブチル（メタ）アクリレート、ペンチル（メタ）アクリレート、*t*-ペンチル（メタ）アクリレート、ヘキシル（メタ）アクリレート、ヘプチル（メタ）アクリレート、ノニル（メタ）アクリレート、ステアシル（メタ）アクリレート、シクロペンチル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレートなどの直鎖状、分岐鎖状または環状のアルキル（メタ）アクリレートがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

なお、本明細書にいう「～（メタ）アクリレート」とは、「～アクリレートおよび／または～メタクリレート」を意味し、他の（メタ）アクリレート誘導体についても同様である。

フッ素含有アルキル（メタ）アクリレートは、眼用レンズ材料の抗脂質汚染性を向上させる成分である。

フッ素含有アルキル（メタ）アクリレートの代表例としては、たとえば一般式（X）：



（式中、 R^4 は水素原子または CH_3 、 s は1～15の整数、 t は1～ $(2s+1)$ の整数を示す）で表わされる化合物があげられる。

前記一般式(X)で表わされる化合物の具体例としては、たとえば2, 2, 2-トリフルオロエチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3-テトラフルオロ-*t*-ペンチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロブチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロ-*t*-ヘキシル(メタ)アクリレート、2, 3, 4, 5, 5, 5-ヘキサフルオロ-2, 4-ビス(トリフルオロメチル)ペンチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3, 4, 4-ヘキサフルオロブチル(メタ)アクリレート、2, 2, 2, 2', 2', 2'-ヘキサフルオロイソプロピル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル(メタ)アクリレート、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8-ドデカフルオロオクチル(メタ)アクリレート、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8-トリデカフルオロオクチル(メタ)アクリレート、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 7-トリデカフルオロヘプチル(メタ)アクリレート、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10-ヘキサデカフルオロデシル(メタ)アクリレート、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 1

0-ヘプタデカフルオロデシル(メタ)アクリレート、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 11, 11-オクタデカフルオロウンデシル(メタ)アクリレート、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 11, 11, 11-ノナデカフルオロウンデシル(メタ)アクリレート、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 9, 9, 10, 10, 11, 11, 12, 12-エイコサフルオロドデシル(メタ)アクリレートなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

モノマー(D)の量は、ポリシロキサンマクロモノマー(A)、シリコン含有アルキルメタクリレート(B)および親水性モノマー(C)による効果が十分に発現されるように、重合成分の20重量%以下、好ましくは10重量%以下であることが望ましく、またモノマー(D)を添加する場合、その効果を十分に発現させるためには、重合成分の0.01重量%以上、好ましくは0.1重量%以上であることが望ましい。

低分子架橋性モノマー(E)は、眼用レンズ材料の機械的強度をさらに向上させ、耐久性を付与する成分である。

本発明において、低分子架橋性モノマー(E)として、アクリロイル基、ビニル基およびアリル基から選ばれた少なくとも1種の基とメタクリロイル基とを含む架橋性モノマー(E-1)と、少なくとも2つのメタクリロイル基を含む架橋性モノマー(E-2)とが併用されることも、大きな特徴の1つである。

架橋性モノマー（E-1）の代表例としては、たとえばアリルメタクリレート、ビニルメタクリレート、4-ビニルベンジルメタクリレート、3-ビニルベンジルメタクリレート、メタクリロイルオキシエチルアクリレートなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

架橋性モノマー（E-2）の代表例としては、たとえばエチレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、トリエチレングリコールジメタクリレート、テトラエチレングリコールジメタクリレート、プロピレングリコールジメタクリレート、ジプロピレングリコールジメタクリレート、ブタンジオールジメタクリレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、2, 2-ビス（p-メタクリロイルオキシフェニル）ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス（m-メタクリロイルオキシフェニル）ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス（o-メタクリロイルオキシフェニル）ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス（p-メタクリロイルオキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（m-メタクリロイルオキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（o-メタクリロイルオキシフェニル）プロパン、1, 4-ビス（2-メタクリロイルオキシヘキサフルオロイソプロピル）ベンゼン、1, 3-ビス（2-メタクリロイルオキシヘキサフルオロイソプロピル）ベンゼン、1, 2-ビス（2-メタクリロイルオキシヘキサフルオロイソプロピル）ベンゼン、1, 4-ビス（2-メタクリロイルオキシイソプロピル）ベンゼン、1, 3-ビス（2-メタクリロイルオキシイソプロピル）ベンゼン、1,

２－ビス（２－メタクリロイルオキシイソプロピル）ベンゼンなどがあげられ、これらは単独でまたは２種以上を混合して用いることができる。

なお所望の機械的性質を得るためには、架橋点間距離を短くすることが重要であり、さらに架橋性モノマーの重合性を考慮しても低分子化合物が好ましい。

本発明に用いられる低分子架橋性モノマー（E）は、アクリロイル基、ビニル基およびアリル基から選ばれた少なくとも１種の基とメタクリロイル基という、異なる重合性基を有する架橋性モノマー（E－１）と、少なくとも２つのメタクリロイル基という、同じ重合性基を有する架橋性モノマー（E－２）とであるが、これら架橋性モノマー（E－１）（E－２）と併用されるのが、高分子架橋性モノマーとして作用するポリシロキサンマクロモノマー（A）である。このポリシロキサンマクロモノマー（A）はアクリロイル基、ビニル基およびアリル基から選ばれた基を有しているので、これらアクリロイル基、ビニル基およびアリル基を有するモノマーからなるセグメントを効果的に結び付けることができる。ここで、たとえば架橋性モノマー（E－２）としてエチレングリコールジメタクリレートを用いた場合、メタクリロイル基を含むセグメント同士が結び付けられ、さらに架橋性モノマー（E－１）としてアリルメタクリレートを用いた場合、アクリロイル基、ビニル基およびアリル基を含むセグメントと、メタクリロイル基を有するモノマーからなるセグメントとが効果的に結び付けられる。しかもこれらエチレングリコールジメタクリレートおよびアリルメタクリレートはいずれもビニルメタクリレート

などの化合物に比べて毒性が低く、眼用レンズ材料に非常に適したモノマーである。

このように、高分子架橋性モノマーであるポリシロキサンマクロモノマー(A)と、低分子架橋性モノマー(E)であるアリルメタクリレートおよびエチレングリコールジメタクリレートとの3種のモノマーを併用することにより、重合体に効果的な架橋構造を付与することができ、しかも毒性を付与することがない。したがって、機械的特性にすぐれ、安全性の高い眼用レンズ材料を得るには、前記低分子架橋性モノマー(E)のなかでも、架橋性モノマー(E-1)がアリルメタクリレートであり、かつ架橋性モノマー(E-2)がエチレングリコールジメタクリレートであることがとくに好ましい。

低分子架橋性モノマー(E)の量は、眼用レンズ材料が脆くならないようにするには、ポリシロキサンマクロモノマー(A)、シリコン含有アルキルメタクリレート(B)、親水性モノマー(C)およびモノマー(D)の合計量100重量部(以下、部という)に対して1部以下、好ましくは0.8部以下であることが望ましく、また眼用レンズ材料の機械的強度をさらに向上させ、耐久性を付与する効果を十分に発現させるためには、ポリシロキサンマクロモノマー(A)、シリコン含有アルキルメタクリレート(B)、親水性モノマー(C)およびモノマー(D)の合計量100部に対して0.05部以上、好ましくは0.1部以上であることが望ましい。

本発明においては、前記したように、異なる重合性基を有する2種のモノマーからなる低分子架橋性モノマー(E)と、高分子架橋性モノマーであるポリシロキサン

マクロモノマー（A）とが、架橋成分として同時に用いられており、異なる重合性基を有するシリコン含有アルキルメタクリレート（B）、親水性モノマー（C）およびモノマー（D）の共重合性を著しく向上させ、得られる眼用レンズ材料の各種物性を向上させている。したがって、各モノマー中の重合性基の割合が、たとえば以下の条件にて規定されていることがより好ましい。

親水性モノマー（C）およびモノマー（D）中のアクリロイル基のモル数とビニル基のモル数とアリル基のモル数との合計量を α 、シリコン含有アルキルメタクリレート（B）およびモノマー（D）中のメタクリロイル基のモル数の合計量を β 、ポリシロキサンマクロモノマー（A）および低分子架橋性モノマー（E）中のアクリロイル基のモル数とビニル基のモル数とアリル基のモル数との合計量を γ 、低分子架橋性モノマー（E）中のメタクリロイル基のモル数の合計量を δ とすると、これら α 、 β 、 γ および δ が、 $\alpha / \gamma = 20 \sim 80$ 、かつ $\beta / \delta = 15 \sim 30$ を満足することが好ましい。

前記 α / γ は、アクリロイル基、ビニル基および／またはアリル基を含有するポリマー中の架橋密度が高くなり、得られる眼用レンズ材料の硬度が高くなりすぎたり、伸びが低下するおそれをなくすという点から、20以上、好ましくは25以上であることが望ましく、またアクリロイル基、ビニル基および／またはアリル基を有するモノマーが架橋されずに多く存在し、残留モノマーが増加して眼用レンズ材料の表面がべたついたり、摩擦性が上昇するおそれをなくすためには、80以下、好ましくは75以下であることが望ましい。

前記 β / δ は、メタクリロイル基の架橋が多くなりすぎ、眼用レンズ材料の柔軟性が低下しないようにするには、15以上、好ましくは16以上であることが望ましく、またメタクリロイル基を含有したポリマーのドメインが大きくなり、眼用レンズ材料の透明性が低下しないようにするには、30以下、好ましくは28以下であることが望ましい。

本発明においては、前記低分子架橋性モノマー（E）の量がポリシロキサンマクロモノマー（A）、シリコン含有アルキルメタクリレート（B）、親水性モノマー（C）およびモノマー（D）の合計量100部に対して1部以下であり、かつ $\alpha / \gamma = 20 \sim 80$ であり、かつ $\beta / \delta = 15 \sim 30$ であることが、重合成分の共重合性をより向上させ、眼用レンズ材料の各種物性をより向上させることができるという点からさらに好ましい。

さらに（ α / γ ）と（ β / δ ）との割合である架橋点比は、架橋成分の各重合性基が同一重合性基のモノマーによってすべて架橋反応するとしたとき、アクリロイル架橋点、ビニル架橋点またはアリル架橋点と、メタクリロイル架橋点との生成しやすさの比である。かかる架橋点比（（ α / γ ）／（ β / δ ））は、共重合体の均一性の点から1に近いことが好ましいが、実際のところ、とくにアリル基の反応性が低いことを考慮すると、1～3であることが好ましい。アクリロイル基、ビニル基またはアリル基を有するモノマーとメタクリロイル基を有するモノマーとの比にもよるが、かかる架橋点比があまりにも大きい場合には、不均一な架橋構造となりやすく、眼用レンズ材料の透明性が低下したり、表面のべたつき

や摩擦性が上昇する傾向がある。一方架橋点比があまりにも小さい場合には、メタクリロイル架橋点が増加し、眼用レンズ材料の含水率や柔軟性が低下したり、応力緩和が上昇する傾向がある。したがって、かかる架橋点比は1以上、好ましくは1.1以上であることが望ましく、3以下、好ましくは2.9以下であることが望ましい。

本発明の眼用レンズ材料は、前記ポリシロキサンマクロモノマー(A)、シリコン含有アルキルメタクリレート(B)、親水性モノマー(C)、モノマー(D)および低分子架橋性モノマー(E)を主成分とした重合成分を重合させた共重合体からなるものであるが、かかる重合成分には、さらに眼用レンズ材料の各種物性を向上させることを目的として、これらポリシロキサンマクロモノマー(A)、シリコン含有アルキルメタクリレート(B)、親水性モノマー(C)、モノマー(D)および低分子架橋性モノマー(E)と共重合可能な不飽和二重結合を有するモノマー(以下、他のモノマー(F)という)を含有させることができる。なお、該他のモノマー(F)を用いる場合、主成分であるポリシロキサンマクロモノマー(A)、シリコン含有アルキルメタクリレート(B)、親水性モノマー(C)、モノマー(D)および低分子架橋性モノマー(E)の合計量は、眼用レンズ材料のすぐれた酸素透過性、機械的強度、柔軟性、表面水濡れ性および装用感、ならびに低摩擦性を考慮すると、重合成分の70重量%以上、好ましくは80重量%以上であることが望ましい。

また他のモノマー(F)を用いる場合、前記 α と γ との割合(α/γ)が20~80の範囲であり、かつ β と

δ との割合 (β / δ) が 15 ~ 30 の範囲であり、かつ架橋点比 ($(\alpha / r) / (\beta / \delta)$) が 1 ~ 3 の範囲となるように他のモノマー (F) の量を調整することが好ましい。

たとえば眼用レンズ材料の硬度を調節して硬質性や軟質性を付与する目的で、硬度調節モノマーを他のモノマー (F) として用いることができる。

硬度調節モノマーの代表例としては、たとえば 2-エトキシエチル(メタ)アクリレート、3-エトキシプロピル(メタ)アクリレート、2-メトキシエチル(メタ)アクリレート、3-メトキシプロピル(メタ)アクリレートなどのアルコキシアルキル(メタ)アクリレート；エチルチオエチル(メタ)アクリレート、メチルチオエチル(メタ)アクリレートなどのアルキルチオアルキル(メタ)アクリレート；スチレン； α -メチルスチレン；メチルスチレン、エチルスチレン、プロピルスチレン、ブチルスチレン、*t*-ブチルスチレン、イソブチルスチレン、ペンチルスチレンなどのアルキルスチレン；メチル- α -メチルスチレン、エチル- α -メチルスチレン、プロピル- α -メチルスチレン、ブチル- α -メチルスチレン、*t*-ブチル- α -メチルスチレン、イソブチル- α -メチルスチレン、ペンチル- α -メチルスチレンなどのアルキル- α -メチルスチレンなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

重合成分中の硬度調節モノマーの量は、眼用レンズ材料に所望の硬質性や軟質性が十分に付与するためには、1重量%以上、好ましくは3重量%以上であることが望

ましく、また眼用レンズ材料の酸素透過性や機械的強度が低下しないようにするには、30重量%以下、好ましくは20重量%以下であることが望ましい。

たとえば眼用レンズ材料の酸素透過性をさらに向上させる目的で、シリコン含有アルキルアクリレートを他のモノマー（F）として用いることができる。

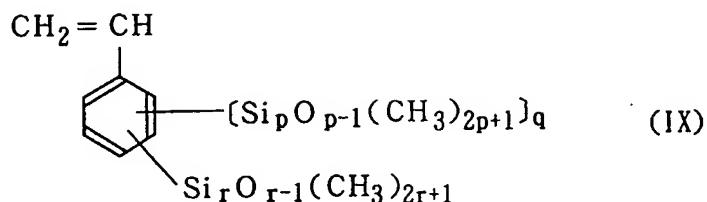
前記シリコン含有アルキルアクリレートの代表例としては、たとえばトリメチルシロキシジメチルシリルメチルアクリレート、トリメチルシロキシジメチルシリルプロピルアクリレート、メチルビス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルアクリレート、トリス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルアクリレート、モノ〔メチルビス（トリメチルシロキシ）シロキシ〕ビス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルアクリレート、トリス〔メチルビス（トリメチルシロキシ）シロキシ〕シリルプロピルアクリレート、メチルビス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルグリセリルアクリレート、トリス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルグリセリルアクリレート、モノ〔メチルビス（トリメチルシロキシ）シロキシ〕ビス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルグリセリルアクリレート、トリメチルシリルエチルテトラメチルジシロキシプロピルグリセリルアクリレート、トリメチルシリルメチルアクリレート、トリメチルシリルプロピルアクリレート、トリメチルシリルプロピルグリセリルアクリレート、トリメチルシロキシジメチルシリルプロピルグリセリルアクリレート、メチルビス（トリメチルシロキシ）シリルエチルテトラメチルジシロキシメチルアクリレート、テトラメチルトリイソプロピルシクロテトラ

シロキサニルプロピルアクリレート、テトラメチルトリイソプロピルシクロテトラシロキシビス（トリメチルシロキシ）シリルプロピルアクリレートなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

重合成分中のシリコン含有アルキルアクリレートの量は、眼用レンズ材料の酸素透過性を充分に向上させるためには、1重量%以上、好ましくは3重量%以上であることが望ましく、また眼用レンズ材料の表面水濡れ性が低下しないようにするには、30重量%以下、好ましくは20重量%以下であることが望ましい。

たとえば眼用レンズ材料の酸素透過性および機械的強度をさらに向上させる目的で、シリコン含有スチレン誘導体を他のモノマー（F）として用いることができ。

シリコン含有スチレン誘導体としては、たとえば一般式 (IX) :



(式中、 p は 1 ～ 15 の整数、 q は 0 または 1、 r は 1 ～ 15 の整数を示す) で表わされる化合物などがあげられる。一般式 (IX) で表わされるシリコン含有スチレン誘導体においては、 p または r が 16 以上の整数である場合には、その精製や合成が困難となり、さらには得られる眼用レンズ材料の硬度が低下する傾向があり、また q が 2 以上の整数である場合には、該シリコン含有スチレン誘導体の合成が困難となる傾向がある。

前記一般式 (IX) で表わされるシリコン含有スチレン誘導体の代表例としては、たとえばトリス (トリメチルシロキシ) シリルスチレン、ビス (トリメチルシロキシ) メチルシリルスチレン、(トリメチルシロキシ) ジメチルシリルスチレン、トリス (トリメチルシロキシ) シロキシジメチルシリルスチレン、[ビス (トリメチルシロキシ) メチルシロキシ] ジメチルシリルスチレン、(トリメチルシロキシ) ジメチルシリルスチレン、ヘプタメチルトリシロキサニルスチレン、ノナメチルテトラシロキサニルスチレン、ペンタデカメチルヘプタシロキサニルスチレン、ヘンエイコサメチルデカシロキサニルスチレン、ヘプタコサメチルトリデカシロキサニルスチレン、ヘントリアコンタメチルペンタデカシロキサニルスチレン、トリメチルシロキシペンタメチルジシロキシメチルシリルスチレン、トリス (ペンタメチルジシロキシ) シリルスチレン、トリス (トリメチルシロキシ) シロキシビス (トリメチルシロキシ) シリルスチレン、ビス (ヘプタメチルトリシロキシ) メチルシリルスチレン、トリス [メチルビス (トリメチルシロキシ) シロキシ] シリルスチレン、トリメチルシロキシビス [トリス (トリメチルシロキシ) シロキシ] シリルスチレン、ヘプタキス (トリメチルシロキシ) トリシリルスチレン、ノナメチルテトラシロキシウンデシルメチルペンタシロキシメチルシリルスチレン、トリス [トリス (トリメチルシロキシ) シロキシ] シリルスチレン、(トリストリメチルシロキシヘキサメチル) テトラシロキシ [トリス (トリメチルシロキシ) シロキシ] トリメチルシロキシシリルスチレン、ノナキス (トリメチルシロキシ) テトラシリル

スチレン、ビス（トリデカメチルヘキサシロキシ）メチルシリルスチレン、ヘプタメチルシクロテトラシロキサンニルスチレン、ヘプタメチルシクロテトラシロキシビス（トリメチルシロキシ）シリルスチレン、トリプロピルテトラメチルシクロテトラシロキサンニルスチレン、トリメチルシリルスチレンなどがあげられ、これらは単独でまたは２種以上を混合して用いることができる。

重合成分中のシリコン含有スチレン誘導体の量は、眼用レンズ材料の酸素透過性および機械的強度を充分に向上させるためには、１重量％以上、好ましくは３重量％以上であることが望ましく、また眼用レンズ材料の表面水濡れ性が低下しないようにするには、３０重量％以下、好ましくは２０重量％以下であることが望ましい。

たとえば眼用レンズ材料の柔軟性および表面水濡れ性をさらに向上させる目的で、メタクリロイル基を有する親水性モノマーを他のモノマー（Ｆ）として用いることができる。

メタクリロイル基を有する親水性モノマーの代表例としては、たとえばメタクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルメタクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチルメタクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノプロピルメタクリルアミド、Ｎ－イソプロピルメタクリルアミド、メタクリロイルモルホリンなどのメタクリルアミド系モノマー；２－ヒドロキシエチルメタクリレート、ヒドロキシプロピルメタクリレート、ヒドロキシブチルメタクリレートなどのヒドロキシアルキルメタクリレート；２－ジメチルアミノエチルメタクリレート、２－ブチルアミノエチルメタクリレートなどの（アルキル）アミノアルキルメタクリレー

ト；エチレングリコールモノメタクリレート、プロピレングリコールモノメタクリレートなどのアルキレングリコールモノメタクリレート；ポリエチレングリコールモノメタクリレート、ポリプロピレングリコールモノメタクリレートなどのポリアルキレングリコールモノメタクリレート；メタクリル酸などがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

重合成分中のメタクリロイル基を有する親水性モノマーの量は、眼用レンズ材料の柔軟性および表面水濡れ性を充分に向上させるためには、1重量%以上、好ましくは3重量%以上であることが望ましく、また眼用レンズ材料の酸素透過性が低下しないようにするには、30重量%以下、好ましくは20重量%以下であることが望ましい。

たとえば眼用レンズ材料に紫外線吸収性を付与したり、材料を着色する目的で、重合性紫外線吸収性モノマー、重合性色素および重合性紫外線吸収性色素を他のモノマー（F）として用いることができる。

前記重合性紫外線吸収性モノマーの具体例としては、たとえば2-ヒドロキシ-4-(メタ)アクリロイルオキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-(メタ)アクリロイルオキシ-5-tert-ブチルベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-(メタ)アクリロイルオキシ-2', 4'-ジクロロベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-(2'-ヒドロキシ-3'-(メタ)アクリロイルオキシプロポキシ)ベンゾフェノンなどのベンゾフェノン系重合性紫外線吸収性モノマー；2-(2'-ヒドロキシ-5'-(メタ)アクリロイルオキシエチルフェニル)

－ 2 H－ベンゾトリアゾール、 2－（2′－ヒドロキシ－5′－（メタ）アクリロイルオキシエチルフェニル）－5－クロロ－2 H－ベンゾトリアゾール、 2－（2′－ヒドロキシ－5′－（メタ）アクリロイルオキシプロピルフェニル）－2 H－ベンゾトリアゾール、 2－（2′－ヒドロキシ－5′－（メタ）アクリロイルオキシプロピル－3′－t－ブチルフェニル）－5－クロロ－2 H－ベンゾトリアゾールなどのベンゾトリアゾール系重合性紫外線吸収性モノマー； 2－ヒドロキシ－4－メタクリロイルオキシメチル安息香酸フェニルなどのサリチル酸誘導体系重合性紫外線吸収性モノマー； 2－シアノー3－フェニル－3－（3′－（メタ）アクリロイルオキシフェニル）プロペニル酸メチルエステルなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

前記重合性色素の具体例としては、たとえば 1－フェニルアゾ－4－（メタ）アクリロイルオキシナフタレン、 1－フェニルアゾ－2－ヒドロキシ－3－（メタ）アクリロイルオキシナフタレン、 1－ナフチルアゾ－2－ヒドロキシ－3－（メタ）アクリロイルオキシナフタレン、 1－（ α －アントリルアゾ）－2－ヒドロキシ－3－（メタ）アクリロイルオキシナフタレン、 1－（（4′－（フェニルアゾ）－フェニル）アゾ）－2－ヒドロキシ－3－（メタ）アクリロイルオキシナフタレン、 1－（2′，4′－キシリルアゾ）－2－（メタ）アクリロイルオキシナフタレン、 1－（o－トリルアゾ）－2－（メタ）アクリロイルオキシナフタレン、 2－（m－（メタ）アクリロイルアミド－アニリノ）－4，6－ビス（1′－

(o-トリルアゾ)-2'-ナフチルアミノ)-1, 3, 5-トリアジン、2-(m-ビニルアニリノ)-4-(4'-ニトロフェニルアゾ)-アニリノ)-6-クロロ-1, 3, 5-トリアジン、2-(1'-(o-トリルアゾ)-2'-ナフチルオキシ)-4-(m-ビニルアニリノ)-6-クロロ-1, 3, 5-トリアジン、2-(p-ビニルアニリノ)-4-(1'-(o-トリルアゾ)-2'-ナフチルアミノ)-6-クロロ-1, 3, 5-トリアジン、N-(1'-(o-トリルアゾ)-2'-ナフチル)-3-ビニルフタル酸モノアミド、N-(1'-(o-トリルアゾ)-2'-ナフチル)-6-ビニルフタル酸モノアミド、3-ビニルフタル酸-(4'-(p-スルホフェニルアゾ)-1'-ナフチル)モノエステル、6-ビニルフタル酸-(4'-(p-スルホフェニルアゾ)-1'-ナフチル)モノエステル、3-(メタ)アクリロイルアミド-4-フェニルアゾフェノール、3-(メタ)アクリロイルアミド-4-(8'-ヒドロキシ-3', 6'-ジスルホ-1'-ナフチルアゾ)-フェノール、3-(メタ)アクリロイルアミド-4-(1'-フェニルアゾ-2'-ナフチルアゾ)-フェノール、3-(メタ)アクリロイルアミド-4-(p-トリルアゾ)フェノール、2-アミノ-4-(m-(2'-ヒドロキシ-1'-ナフチルアゾ)アニリノ)-6-イソプロペニル-1, 3, 5-トリアジン、2-アミノ-4-(N-メチル-p-(2'-ヒドロキシ-1'-ナフチルアゾ)アニリノ)-6-イソプロペニル-1, 3, 5-トリアジン、2-アミノ-4-(m-(4'-ヒドロキシ-1'-フェニルアゾ)アニリノ)-6-イソプロペニル-1,

3, 5-トリアジン、2-アミノ-4-(N-メチル-p-(4'-ヒドロキシフェニルアゾ)アニリノ)-6-イソプロペニル-1, 3, 5-トリアジン、2-アミノ-4-(m-(3'-メチル-1'-フェニル-5'-ヒドロキシ-4'-ピラゾリルアゾ)アニリノ)-6-イソプロペニル-1, 3, 5-トリアジン、2-アミノ-4-(N-メチル-p-(3'-メチル-1'-フェニル-5'-ヒドロキシ-4'-ピラゾリルアゾ)アニリノ)-6-イソプロペニル-1, 3, 5-トリアジン、2-アミノ-4-(p-フェニルアゾアニリノ)-6-イソプロペニル-1, 3, 5-トリアジン、4-フェニルアゾ-7-(メタ)アクリロイルアミド-1-ナフトールなどのアゾ系重合性色素；1, 5-ビス((メタ)アクリロイルアミノ)-9, 10-アントラキノン、1-(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、4-アミノ-1-(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、5-アミノ-1-(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、8-アミノ-1-(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、4-ニトロ-1-(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、4-ヒドロキシ-1-(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、1-(3'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、1-(2'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、1-(4'-イソプロペニルベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、1-(3'-イソプロペニルベンゾイルアミド)-9, 1

0-アントラキノン、1-(2'-イソプロペニルベン
ゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、1, 4-
ビス(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-ア
ントラキノン、1, 4-ビス(4'-イソプロペニルベ
ンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、1, 5'-
-ビス(4'-ビニルベンゾイルアミド)-9, 10-
アントラキノン、1, 5-ビス(4'-イソプロペニル
ベンゾイルアミド)-9, 10-アントラキノン、1-
メチルアミノ-4-(3'-ビニルベンゾイルアミド)
-9, 10-アントラキノン、1-メチルアミノ-4-
(4'-ビニルベンゾイルオキシエチルアミノ)-9,
10-アントラキノン、1-アミノ-4-(3'-ビニ
ルフェニルアミノ)-9, 10-アントラキノン-2-
スルホン酸、1-アミノ-4-(4'-ビニルフェニル
アミノ)-9, 10-アントラキノン-2-スルホン酸、
1-アミノ-4-(2'-ビニルベンジルアミノ)-9,
10-アントラキノン-2-スルホン酸、1-アミノ-
4-(3'-(メタ)アクリロイルアミノフェニルアミ
ノ)-9, 10-アントラキノン-2-スルホン酸、1-
アミノ-4-(3'-(メタ)アクリロイルアミノベ
ンジルアミノ)-9, 10-アントラキノン-2-スル
ホン酸、1-(β -エトキシカルボニルアリルアミノ)
-9, 10-アントラキノン、1-(β -カルボキシア
リルアミノ)-9, 10-アントラキノン、1, 5-ジ
-(β -カルボキシアリルアミノ)-9, 10-アント
ラキノン、1-(β -イソプロポキシカルボニルアリル
アミノ)-5-ベンゾイルアミド-9, 10-アントラ
キノン、2-(3'-(メタ)アクリロイルアミド-ア

ニリノ) - 4 - (3' - (3" - スルホ - 4" - アミノ
 アントラキノン - 1" - イル) - アミノ - アニリノ) -
 6 - クロロ - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - (3' - (メ
 タ)アクリロイルアミド - アニリノ) - 4 - (3' - (3"
 - スルホ - 4" - アミノアントラキノン - 1" - イル)
 - アミノ - アニリノ) - 6 - ヒドラジノ - 1, 3, 5 -
 トリアジン、2, 4 - ビス - ((4" - メトキシアン
 トラキノン - 1" - イル) - アミノ) - 6 - (3' - ビ
 ニルアニリノ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - (2' -
 ビニルフェノキシ) - 4 - (4' - (3" - スルホ - 4"
 - アミノアントラキノン - 1" - イル - アミノ) - ア
 ニリノ) - 6 - クロロ - 1, 3, 5 - トリアジンなどのア
 ントラキノン系重合性色素；o - ニトロアニリノメチル
 (メタ)アクリレートなどのニトロ系重合性色素；(メ
 タ)アクリロイル化テトラアミノ銅フタロシアニン、(メ
 タ)アクリロイル化(ドデカ⁹イル化テトラアミノ銅フ
 タロシアニン)などのフタロシアニン系重合性色素など
 があげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して
 用いることができる。

前記重合性紫外線吸収性色素の具体例としては、たと
 えば2, 4 - ジヒドロキシー - 3 (p - スチレノアゾ) ベ
 ンゾフェノン、2, 4 - ジヒドロキシー - 5 - (p - スチ
 レノアゾ) ベンゾフェノン、2, 4 - ジヒドロキシー - 3
 - (p - (メタ)アクリロイルオキシメチルフェニルア
 ザ) ベンゾフェノン、2, 4 - ジヒドロキシー - 5 - (p
 - (メタ)アクリロイルオキシメチルフェニルアゾ) ベ
 ンゾフェノン、2, 4 - ジヒドロキシー - 3 - (p - (メ
 タ)アクリロイルオキシエチルフェニルアゾ) ベンゾフ

エノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(p-(メタ)アクリロイルオキシエチルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(p-(メタ)アクリロイルオキシプロピルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(p-(メタ)アクリロイルオキシプロピルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(o-(メタ)アクリロイルオキシメチルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(o-(メタ)アクリロイルオキシメチルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(o-(メタ)アクリロイルオキシエチルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(o-(メタ)アクリロイルオキシエチルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(o-(メタ)アクリロイルオキシプロピルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(o-(メタ)アクリロイルオキシプロピルフェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(p-(N, N-ジ(メタ)アクリロイルオキシエチルアミノ)フェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(p-(N, N-ジ(メタ)アクリロイルオキシエチルアミノ)フェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(o-(N, N-ジ(メタ)アクリロイルオキシエチルアミノ)フェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(o-(N, N-ジ(メタ)アクリロイルエチルアミノ)フェニルアゾ)ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(p-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルオキシエチルアミノ)フェニ

ルアゾ) ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(p-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルオキシエチルアミノ)フェニルアゾ) ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(o-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルオキシエチルアミノ)フェニルアゾ) ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(o-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルオキシエチルアミノ)フェニルアゾ) ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(p-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルアミノ)フェニルアゾ) ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(p-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルアミノ)フェニルアゾ) ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-3-(o-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルアミノ)フェニルアゾ) ベンゾフェノン、2, 4-ジヒドロキシ-5-(o-(N-エチル-N-(メタ)アクリロイルアミノ)フェニルアゾ) ベンゾフェノンなどのベンゾフェノン系重合性紫外線吸収色素や、2-ヒドロキシ-4-(p-スチレノアゾ)安息香酸フェニルなどの安息香酸系重合性紫外線吸収色素などがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。

重合性紫外線吸収性モノマー、重合性色素および重合性紫外線吸収性色素の量は、レンズの厚さに大きく影響されるため、重合成分全量100部に対して3部以下、好ましくは0.01~2部であることが望ましい。これらの量が3部をこえる場合、眼用レンズ材料の機械的強度などが低下する傾向がある。さらに紫外線吸収性モノマーや色素の毒性も考慮すると、生体組織に直接接触す

るコンタクトレンズや生体中に埋め込む眼内レンズといった眼用レンズの材料として適さなくなる傾向がある。さらに、とくに色素の場合、その量が多すぎると、レンズの色が濃くなって透明性が低下し、レンズが可視光線を透過しにくくなる傾向がある。

本発明の眼用レンズ材料を構成する共重合体を得るには、ポリシロキサンマクロモノマー（A）、シリコン含有アルキルメタクリレート（B）、親水性モノマー（C）、モノマー（D）および低分子架橋性モノマー（E）、ならびに必要に応じて他のモノマー（F）の量を、それぞれ前記範囲内となるように適宜調整した重合成分を、加熱および／または紫外線照射して鋳型法にて重合させる。

重合成分を加熱して鋳型法にて重合させる場合には、所望の眼用レンズの形状に対応した鋳型内に重合成分およびラジカル重合開始剤を配合したのち、該鋳型を徐々に加熱して重合成分の重合を行ない、得られた成形体に必要なに応じて切削加工、研磨加工などの機械的加工を施す。また切削は成形体（共重合体）の少なくとも一方の面または両方の面の全面にわたって行なってもよいし、成形体（共重合体）の少なくとも一方の面または両方の面の一部に対して行なってもよい。本発明の眼用レンズ材料としては、特殊レンズなど、製品の使用用途に広がりを持たせるということを考慮して、成形体（共重合体）の少なくとも一方の面またはその一部を切削したものであることがとくに好ましい。かかる成形体（共重合体）の少なくとも一方の面を切削するとは、ブランクモデルを行なうこと、すなわち鋳型法にて重合して得られたブランクスを切削して所望の眼用レンズ形状にするこ

とを含む概念である。なお重合はたとえば塊状重合法でなされてもよく、溶媒などを用いた溶液重合法でなされてもよい。

前記ラジカル重合開始剤の具体例としては、たとえばアゾビスイソブチロニトリル、アゾビスジメチルバレロニトリル、ベンゾイルパーオキサイド、*t*-ブチルハイドロパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイドなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。該ラジカル重合開始剤の量は、重合成分100部に対して約0.001～2部、好ましくは0.01～1部であることが望ましい。

鋳型内の重合成分を加熱する際の加熱温度は、重合時間の短縮および残留モノマー成分の低減という点から、50℃以上、好ましくは60℃以上であることが望ましく、また各重合成分の揮発を抑制するという点および型の変形を防止するという点から、150℃以下、好ましくは140℃以下であることが望ましい。また鋳型内の重合成分を加熱する際の加熱時間は、重合時間の短縮および残留モノマー成分の低減という点から、10分間以上、好ましくは20分間以上であることが望ましく、また型の変形を防止するという点から、120分間以下、好ましくは60分間以下であることが望ましい。なお、かかる加熱は段階的に昇温させて行なってもよい。

重合成分を加熱して重合させる際には、水濡れ性の向上および材料表面のべたつきの低減という点を考慮して、重合成分が、ポリシロキサンマクロモノマー(A)およびシリコン含有アルキルメタクリレート(B)の合計と親水性モノマー(C)との割合[(A)および(B)の

合計 / (C) (重量比)] が 30 / 70 ~ 70 / 30 、好ましくは 40 / 60 ~ 65 / 35 であり、かつポリシロキサンマクロモノマー (A) とシリコン含有アルキルメタクリレート (B) との割合 [(A) / (B) (重量比)] が 25 / 75 ~ 75 / 25 、好ましくは 40 / 60 ~ 60 / 40 であり、かつ N-ビニルピロリドン (C-1) と親水性モノマー (C-2) との割合 [(C-1) / (C-2) (重量比)] が 50 / 50 ~ 100 / 0 、好ましくは 60 / 40 ~ 85 / 15 であり、かつモノマー (D) の量が重合成分の 0 ~ 20 重量%、好ましくは 0 ~ 10 重量% のものであることがとくに望ましい。

重合成分を紫外線照射して鋳型法にて重合させる場合には、所望の眼用レンズの形状に対応した鋳型内に重合成分および光重合開始剤を配合したのち、該鋳型に紫外線を照射して重合成分の重合を行ない、得られた成形体に必要に応じて切削加工、研磨加工などの機械的加工を施す。また切削は成形体 (共重合体) の少なくとも一方の面または両方の面の全面にわたって行なってもよいし、成形体 (共重合体) の少なくとも一方の面または両方の面の一部に対して行なってもよい。本発明の眼用レンズ材料としては、特殊レンズなど、製品の使用用途に広がりを持たせるということを考慮して、成形体 (共重合体) の少なくとも一方の面またはその一部を切削したものであることがとくに好ましい。かかる成形体 (共重合体) の少なくとも一方の面を切削するとは、前記重合成分を加熱して得られた成形体 (共重合体) の場合と同様に、ブランクスマールドを行なうこと、すなわち鋳型法にて重合して得られたブランクスを切削して所望の眼用レン

ズ形状にすることを含む概念である。なお重合は塊状重合法でなされてもよく、溶媒などを用いた溶液重合法でなされてもよい。また、本発明では前記のごとき紫外線照射にて重合が行なわれるが、かかる紫外線照射のかわりに電子線照射を行なうこともでき、この場合、光重合開始剤なしで重合成分が重合される。

前記光重合開始剤の具体例としては、たとえばメチルオルソベンゾイルベンゾエート、メチルベンゾイルフォルメート、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、ベンゾイン-*n*-ブチルエーテルなどのベンゾイン系光重合開始剤；2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、*p*-イソプロピル- α -ヒドロキシイソブチルフェノン、*p*-*t*-ブチルトリクロロアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン、 α , α -ジクロロ-4-フェノキシアセトフェノン、*N*, *N*-テトラエチル-4,4-ジアミノベンゾフェノンなどのフェノン系光重合開始剤；1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン；1-フェニル-1,2-プロパンジオン-2-(*o*-エトキシカルボニル)オキシム；2-クロロチオキサンソン、2-メチルチオキサンソンなどのチオキサンソン系光重合開始剤；ジベンゾスバロン；2-エチルアンスラキノン；ベンゾフェノンアクリレート；ベンゾフェノン；ベンジルなどがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。また該光重合開始剤とともに、光増感剤を用いてもよい。これら光重合開始剤および光増感剤の量は、重合成分100

部に対して約 0.001 ~ 2 部、好ましくは 0.01 ~ 1 部であることが望ましい。

重合成分中の成分の均一性を向上させるために、重合は希釈剤の存在下にて行なうことができる。かかる希釈剤としては重合成分を溶解し得る溶媒が用いられるので、希釈剤が添加された重合成分の混合液は均一化され、重合時に相分離がより起こりにくく、得られる眼用レンズ材料が白濁しにくいという利点がある。

前記希釈剤の代表例としては、たとえばエタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、オクタノール、デカノールなどの炭素数 1 ~ 12 のアルコール；アセトン、メチルエチルケトンなどの炭素数 2 ~ 4 のケトン；アセトニトリル、クロロホルムなどがあげられ、これらは単独でまたは 2 種以上を混合して用いることができる。該希釈剤は、重合成分の種類に応じ、適宜選択して用いればよい。

希釈剤の量は、相分離を抑制する効果を充分に発現させるためには、重合成分 100 部に対して 0.5 部以上、好ましくは 1 部以上であることが望ましく、また眼用レンズ材料が脆くならないようにするには、重合成分 100 部に対して 100 部以下、好ましくは 80 部以下であることが望ましい。

鑄型内の重合成分を紫外線照射する際の波長 365 nm における紫外線照度は、重合時間の短縮、残留モノマー成分の低減およびべたつきの低減という点から、0.5 mW / cm² 以上、好ましくは 1 mW / cm² 以上であることが望ましく、また材料の劣化を防止するという点から、2.0 mW / cm² 以下、好ましくは 1.5 mW / c

m²以下であることが望ましい。また鋳型内の重合成分を紫外線照射する際の照射時間は、残留モノマー成分を低減させるという点および架橋密度を向上させ、べたつきを低減させるという点から、1分間以上、好ましくは5分間以上であることが望ましく、またポリマー主鎖や官能基の切断を防止し、材料の劣化を防止するという点から、80分間以下、好ましくは70分間以下であることが望ましい。

重合成分を紫外線照射して重合させる際には、残留モノマー成分の低減および材料表面の低摩擦性や水濡れ性の向上という点を考慮して、重合成分が、ポリシロキサンマクロモノマー(A)およびシリコン含有アルキルメタクリレート(B)の合計と親水性モノマー(C)との割合[(A)および(B)の合計/(C)(重量比)]が40/60~70/30、好ましくは45/55~65/35であり、かつポリシロキサンマクロモノマー(A)とシリコン含有アルキルメタクリレート(B)との割合[(A)/(B)(重量比)]が35/65~75/25、好ましくは35/65~60/40であり、かつN-ビニルピロリドン(C-1)と親水性モノマー(C-2)との割合[(C-1)/(C-2)(重量比)]が50/50~100/0、好ましくは60/40~85/15であり、かつモノマー(D)の量が重合成分の0~20重量%、好ましくは0~10重量%のものであることがとくに望ましい。

なお、重合成分を加熱して重合する場合および紫外線または電子線照射して重合する場合いずれにおいても、眼内レンズを作製する際には、レンズの支持部をレンズ

とは別に作製してあとでレンズに取り付けてもよいし、レンズと同時に一体的に成形してもよい。

また眼用レンズの表面に親水性および耐脂質汚染性を付与するために、たとえば酸素ガス雰囲気下、不活性ガス雰囲気下または空気中において眼用レンズ表面にプラズマ処理を施してもよい。かかるプラズマ処理を行なう際には、プラズマ発生装置の電極間におけるプラズマ状態は、 $1.3 \sim 1.3 \times 10^2 \text{ Pa}$ 程度の減圧下であってもよく、常圧下であってもよい。

かくして得られる本発明の眼用レンズ材料は、各種特性を兼備したものであり、好ましくは、たとえば以下のごとき物性値を有するものである。

眼用レンズ材料の動摩擦力は 0.025 N 以下、好ましくは 0.023 N 以下であることが望ましい。かかる動摩擦力が小さいほど、眼用レンズ材料は低摩擦性を示す。

眼用レンズ材料の 25°C での接触角は 35° 以下、好ましくは 34° 以下であることが望ましい。かかる接触角が小さいほど、眼用レンズ材料は表面水濡れ性にすぐれる。

なお、前記眼用レンズ材料の動摩擦力および接触角の測定方法は、後述のとおりである。

このように、本発明の眼用レンズ材料は、高酸素透過性および高機械的強度を有することに加え、さらに表面水濡れ性にすぐれ、かつ表面が低摩擦性であるといった特性を兼備しているので、たとえばコンタクトレンズ、眼内レンズ、人工角膜などに好適に使用することができる。

つぎに、本発明の眼用レンズ材料を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はかかる実施例のみに限定されるものではない。

実施例 1 ～ 8 および比較例 1 ～ 8

表 1 ならびに表 2 に示す重合成分および重合開始剤を混合した眼用レンズ成分を、コンタクトレンズ形状を有する鋳型（ポリプロピレン製、直径約 13 mm で厚さ 0.1 mm のコンタクトレンズに対応）またはフィルム形状を有する鋳型（ポリプロピレン製、直径約 15 mm で厚さ 0.2 mm のフィルムに対応）内に注入した。

ついでこの鋳型に、ブラックライトにて、波長 365 nm における照度 $2 \text{ mW} / \text{cm}^2$ で 60 分間紫外線照射して光重合を行ない、共重合体を得た。

得られた共重合体を鋳型から脱離させたのち、生理食塩水中に浸漬させ、吸水させて水和処理を施し、眼用レンズ材料を得た。

実施例 9 ～ 10

表 1 に示す重合成分および重合開始剤を混合した眼用レンズ成分を、コンタクトレンズ形状を有する鋳型（ポリプロピレン製、直径約 13 mm で厚さ 0.1 mm のコンタクトレンズに対応）またはフィルム形状を有する鋳型（ポリプロピレン製、直径約 15 mm で厚さ 0.2 mm のフィルムに対応）内に注入した。

ついでこの鋳型を、100℃に設定した循環式乾燥機内で 40 分間加熱して熱重合を行ない、共重合体を得た。

得られた共重合体を鋳型から脱離させたのち、生理食塩水中に浸漬させ、吸水させて水和処理を施し、眼用レンズ材料を得た。

実施例 1 1 ～ 1 3 および比較例 9

表 3 に示す重合成分および重合開始剤を混合した眼用レンズ成分を、コンタクトレンズ形状を有する鋳型（ポリプロピレン製、直径約 13 mm で厚さ 0.1 mm のコンタクトレンズに対応）またはフィルム形状を有する鋳型（ポリプロピレン製、直径約 15 mm で厚さ 0.2 mm のフィルムに対応）内に注入した。

ついでこの鋳型に、ブラックライトにて、波長 365 nm における照度 $2 \text{ mW} / \text{cm}^2$ で 60 分間紫外線照射して光重合を行ない、共重合体を得た。

得られた共重合体を鋳型から脱離させたのち、生理食塩水中に浸漬させ、吸水させて水和処理を施し、眼用レンズ材料を得た。

試験例 1

実施例 1 ～ 1 3 および比較例 1 ～ 9 で得られた眼用レンズ材料（直径約 13 mm、厚さ 0.1 mm のコンタクトレンズ）の透明性および表面潤滑性を以下の方法にしたがって調べた。その結果を表 4 ～ 表 6 に示す。

（イ）透明性

コンタクトレンズの外観を目視にて観察し、以下の評価基準に基づいて評価した。

（評価基準）

- A：曇りがなく、透明性にきわめてすぐれており、コンタクトレンズとして最適である。
- B：わずかに曇りが認められるが、コンタクトレンズとして問題のない透明性を有する。
- C：白濁が認められ、透明性に劣るため、コンタクトレンズとしての使用が困難である。

D：白濁がいちじるしく、透明性にきわめて劣るため、コンタクトレンズとしての使用が不可能である。

(ロ) 表面潤滑性

コンタクトレンズを手指上で2つ折にして挟み、指でレンズを擦り合わせた際の潤滑性（レンズ同士の接着感およびレンズと手指との接着感）を調べた。またレンズの表面水濡れ性も目視にて観察し、あわせて以下の評価基準に基づいて評価した。

(評価基準)

A：水濡れ性にきわめてすぐれ、かつレンズ同士の滑りが良好であり、コンタクトレンズとして最適である。

B：レンズ同士を擦り合わせるとわずかにきしみが感じられるが、コンタクトレンズとして使用可能な程度である。

C：レンズと手指との接着性はないが、レンズ同士の滑りがわるく、動きがなくなることがある。

D：表面に粘着性があり、レンズと手指との接着性が強い。

試験例 2

実施例 1 ～ 13 および比較例 1 ～ 9 で得られた眼用レンズ材料（直径約 15 mm、厚さ 0.2 mm のフィルム）の摩擦性、表面水濡れ性、柔軟性、耐汚染性、酸素透過性、含水率および屈折率を以下の方法にしたがって調べた。その結果を表 4 ～ 表 6 に示す。

(ハ) 摩擦性

直径 11.28 mm、重量 40 g の円筒形の金属製治具の平滑な面にフィルムを固定し、フィルムがガラス面と接するように蒸留水で濡らしたガラス板上にフィルム

を置いた。これを引張試験機（インストロン社製）を用いて一定速度で引張り、動摩擦力（N）を測定した。

なお、かかる動摩擦力が小さいほど表面潤滑性にすぐれ、低摩擦性である。

（二）表面水濡れ性

接触角計（エルマ販売（株）製、G-I, 2MG）を用い、25℃の生理食塩水中でフィルムの接触角（°）を気泡法にて測定した。表4～表6に記載の接触角値は、生理食塩水に浸漬させたフィルムに、シリンジを用いて2μLの気泡を付着させ、気泡とフィルムとの左右の接触角を平均したものである。

なお、かかる接触角が小さいほど表面水濡れ性にすぐれる。

（ホ）柔軟性

フィルムの周辺を固定し、その中心を先端の直径が1／16インチの球形状の治具で荷重を負荷する装置に固定した。このフィルムに約20gの荷重を負荷して停止し、停止直後の応力（ S_0 （ g/mm^2 ））を測定した。さらにこれを30秒間放置したのち、その応力（ S （ g/mm^2 ））を測定した。これらの応力値 S_0 および S を用い、以下の式にしたがって応力緩和率（％）を算出した。

$$\text{応力緩和率（％）} = \{ (S_0 - S) / S_0 \} \times 100$$

なお、かかる応力緩和率が15％以上である場合、フィルムは反撥性に乏しく、形状回復性に劣り、眼用レンズ材料として適切な柔軟性を有するとはいえない。

（ヘ）耐汚染性

オレイン酸0.3g、リノール酸0.3g、トリパル

ミチン酸 4.0 g、セチルアルコール 1.0 g、パルミチン酸 0.3 g、スパームアセチ 4.0 g、コレステロール 0.4 g、パルミチン酸コレステロール 0.4 g および卵黄レシチン 14.0 g からなる人工眼脂溶液（pH 7 の緩衝液）2 mL が入ったガラス瓶中にフィルムを入れ、37℃で5時間振盪した。

5時間経過後にフィルムを取り出し、これをエタノールとジエチルエーテルとの混合溶液（エタノール：ジエチルエーテル＝3：1（容量比））1 mL 内に浸漬させてフィルムに付着した脂質成分の抽出を行なった。得られた脂質抽出液 500 μ L に濃硫酸を加え、さらにバニリン 3 mg およびリン酸 2 mL を加えてフィルムの脂質付着量（mg / cm²）を定量した。

なお、かかる脂質付着量が 1 mg / cm² 以上である場合、脂質汚れが付着しやすく、耐汚染性に劣る。

（ト）酸素透過性（Dk_{0.2}）

製科研式フィルム酸素透過率計（理化精機工業（株）製）を用い、35℃の生理食塩水中にて厚さ 0.2 mm のフィルムの酸素透過係数を測定した。なお、かかる酸素透過係数の単位は（cm² / sec）（mL O₂ / （mL × h Pa））であり、表 4～表 6 中の値は実測値に 10⁻¹¹ を乗じたものである。

（チ）含水率

水和処理を施したフィルムの平衡含水状態での重量（W（g））を測定し、またかかる水和処理後のフィルムを乾燥器にて乾燥させた状態の重量（W₀（g））を測定した。これらの測定値 W₀ および W を用い、以下の式にしたがって含水率（重量％）を算出した。

$$\text{含水率 (重量\%)} = \{ (W - W_0) / W \} \times 100$$

(リ) 屈折率

アタゴ屈折率計 (アタゴ (株) 製、1 T) を用い、温度 25℃、湿度 50% の雰囲気下でフィルムの屈折率 (単位なし) を測定した。

試験例 3

実施例 2、4～6、12 および比較例 1、5、9 で得られた共重合体 (プレート) について、モノマー残留率を以下の方法にしたがって算出した。その結果を表 4～表 6 に示す。

(ヌ) モノマー残留率

紫外線を照射して光重合を行ない、得られた共重合体を鋳型から離脱させたのち、この共重合体 (プレート、約 0.2 g) を 10 mL のアセトニトリルに浸漬させ、50℃で 24 時間静置して抽出を行なった。

得られた抽出液を高速液体クロマトグラフにて分析し、重合成分である N-ビニルピロリドンおよびトリス (トリメチルシロキシ) シリルプロピルメタクリレートについて、配合量に対する残留モノマーの割合を算出した。なおモノマー残留率 (重量%) は以下の式にしたがって計算した。

モノマー残留率 (重量%)

$$= \{ V \times (A - b) \} / (a \times W \times w \times 100)$$

V : 抽出溶媒量 (mL)

A : モノマーのピーク面積

a : 検量線傾き

b : 検量線切片

W : プレート重量 (g)

w : 配合時のモノマー量 (重量%)

実施例 14 ~ 15

表 7 に示す重合成分および重合開始剤を混合した眼用レンズ成分を、ブロック形状を有する鋳型 (ポリプロピレン製、直径約 12 mm で厚さ約 5 mm のブロックに対応) 内に注入した。

ついでこの鋳型に、ブラックライトにて、波長 365 nm における照度 $2 \text{ mW} / \text{cm}^2$ で 60 分間紫外線照射して光重合を行ない、得られた共重合体を鋳型から離脱させた。

実施例 16

表 7 に示す重合成分および重合開始剤を混合した眼用レンズ成分を、レンズ形状を有する鋳型 (ポリプロピレン製、直径約 13 mm で厚さ約 0.2 mm のレンズに対応) 内に注入した。

ついでこの鋳型を、100℃に設定した循環式乾燥機内で 30 分間加熱して熱重合を行ない、得られた共重合体を鋳型から離脱させた。

試験例 4

実施例 14 ~ 16 で得られた共重合体の透明性および表面潤滑性を試験例 1 の方法にて調べ、またロックウェル硬度および切削性を以下の方法にしたがって調べた。その結果を表 8 に示す。

なお実施例 16 の共重合体については、試料が薄いため、ロックウェル硬度の測定は行なわなかった。

(ル) ロックウェル硬度 (30X)

ロックウェルスーパーフィシャル硬度計 ((株) 明石製作所製、形式 ASD) を用いて共重合体のロックウェ

ル硬度を測定した。

なお、かかるロックウェル硬度が -40 以上であれば、切削加工面はほぼ平滑で、眼用レンズ材料として適切であり、さらに -30 以上であれば、切削加工面は平滑性にすぐれ、眼用レンズ材料としてとくに好ましい。

(ヲ) 切削性

切削旋盤にて共重合体の表面に切削加工を施したのち、表面の粗さを光学顕微鏡にて観察し、以下の評価基準に基づいて評価した。

(評価基準)

- A : 表面がきわめて滑らかで、切削性にすぐれている。
B : 表面がほぼ滑らかである。
C : 切削面に、むしろ、割れまたは亀裂が認められ、白っぽく見える。
D : 柔らかく、切削が不可能である。

なお表中の各略号はそれぞれ以下の化合物を示す。

- SK6006 : マクロモノマー (A-1)
SK5001 : トリス (トリメチルシロキシ) シリルプロピルメタクリレート
DMAA : N, N-ジメチルアクリルアミド
DEAA : N, N-ジエチルアクリルアミド
2HEA : 2-ヒドロキシエチルアクリレート
NVP : N-ビニルピロリドン
EDMA : エチレングリコールジメタクリレート
AMA : アリルメタクリレート
MMA : メチルメタクリレート
Dar : 2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン

A B I : 2, 2' - アソビス (2, 4 - ジメチル
バレロニトリル)

なお表 1 ~ 表 3、表 7 に示す各眼用レンズ成分の量は、
低分子架橋性モノマー (E) であるエチレングリコール
ジメタクリレートおよびアリルメタクリレート以外の重
合成分全量 100 部に対する量 (部) である。

また表 1 ~ 表 3、表 7 中には、以下の① ~ ⑥の値も併
せて示す。

① (A) + (B) / (C) (重量比)

② (A) / (B) (重量比)

③ (C - 1) / (C - 2) (重量比)

④ α / γ (モル比)

⑤ β / δ (モル比)

⑥ (α / γ) / (β / δ) (モル比)

表 1

実施例 番号	眼用レンズ成分 (部)							各成分の割合 (重量比)				重合性基の割合 (モル比)			
	重 合 成 分							重合開始剤	① (A) + (B) /(C)	② (A)/(B)	③ (C-1) /(C-2)	④ α/γ	⑤ β/δ	⑥ $(\alpha/\gamma)/(\beta/\delta)$	
	SK6006	SK5001	NVP	DMAA	EDMA	AMA	Dar								ABI
1	43.5	19.0	30.0	7.5	0.15	0.15	0.15	0.5	62.5/37.5	69.6/30.4	80/20	25.4	16.6	1.5	
2	34.5	28.0	30.0	7.5	0.15	0.15	0.15	0.5	62.5/37.5	55.2/44.8	80/20	31.3	24.5	1.3	
3	28.0	22.0	40.0	10.0	0.15	0.15	0.15	0.5	50/50	56/44	80/20	50.2	19.2	2.6	
4	18.7	31.3	40.0	10.0	0.15	0.15	0.15	0.5	50/50	37.4/62.6	80/20	70.6	27.3	2.6	
5	34.5	28.0	22.5	15.0	0.15	0.15	0.15	0.5	62.5/37.5	55.2/44.8	60/40	32.1	24.5	1.3	
6	18.7	31.3	30.0	20.0	0.15	0.15	0.15	0.5	50/50	37.4/62.6	60/40	72.3	27.3	2.6	
7	43.5	19.0	30.0	7.5	0.10	0.10	0.10	0.5	62.5/37.5	69.6/30.4	80/20	26.2	24.9	1.1	
8	28.0	22.0	40.0	10.0	0.10	0.10	0.20	0.5	50/50	56/44	80/20	48.1	20.0	2.4	
9	28.0	22.0	40.0	10.0	0.15	0.15	0.15	0.2	50/50	56/44	80/20	50.2	19.2	2.6	
10	28.0	22.0	40.0	10.0	0.10	0.10	0.30	0.2	50/50	56/44	80/20	44.4	15.3	2.9	

注1) ①～③の有効な数値範囲は、以下のとおりである。

①: 30/70～70/30

②: 25/75～75/25

③: 50/50～100/0

注2) ④～⑥の好ましい数値範囲は、以下のとおりである。

④: 20～80

⑤: 15～30

⑥: 1～3

表 2

比較例 番号	眼 用 レ ン ズ 成 分 (部)						各成分の割合(重量比)				重合性基の割合(モル比)		
	重 合 成 分						① (A)+(B) /(C)	② (A)/(B)	③ (C-1) /(C-2)	④ α/γ	⑤ β/δ	⑥ $(\alpha/\gamma)/(\beta/\delta)$	
	重 合 開 始 剤												
	SK6006	SK5001	NVP	DMAA	EDMA	AMA							Dar
1	34.5	28.0	30.0	7.5	0.30	—	0.5	62.5/37.5	55.2/44.8	80/20	35.1	21.8	1.6
2	56.3	6.2	30.0	7.5	0.15	0.15	0.5	62.5/37.5	90/10	80/20	20.0	5.4	3.7
3	6.2	56.3	30.0	7.5	0.15	0.15	0.5	62.5/37.5	10/90	80/20	116.8	49.2	2.4
4	33.8	3.7	50.0	12.5	0.15	0.15	0.5	37.5/62.5	90/10	80/20	53.2	3.2	16.4
5	37.5	37.5	20.0	5.0	0.15	0.15	0.5	75/25	50/50	80/20	19.4	32.8	0.6
6	18.7	31.3	10.0	40.0	0.15	0.15	0.5	50/50	37.4/62.6	20/80	75.6	27.3	2.8
7	34.5	28.0	7.5	30.0	0.15	0.15	0.5	62.5/37.5	55.2/44.8	20/80	33.5	24.5	1.4
8	10.0	40.0	—	50.0	0.15	0.15	0.5	50/50	20/80	0/100	124.8	35.0	3.6

注1) ①～③の有効な数値範囲は、以下のとおりである。

①: 30/70～70/30

②: 25/75～75/25

③: 50/50～100/0

注2) ④～⑥の好ましい数値範囲は、以下のとおりである。

④: 20～80

⑤: 15～30

⑥: 1～3

表 3

実施例 番号	眼 用 レ ン ズ 成 分 (部)							各成分の割合 (重量比)			重合性基の割合 (モル比)		
	重 合 成 分							① (A) + (B) /(C)	② (A)/(B)	③ (C-1) /(C-2)	④ α/γ	⑤ β/δ	⑥ $(\alpha/\gamma)/(\beta/\delta)$
	SK6006	SK5001	NVP	DEAA	2HEA	EDMA	AMA						
11	34.5	28.0	30.0	7.5	—	0.15	0.15	62.5/37.5	55.2/44.8	80/20	29.8	24.5	1.2
12	23.0	27.0	40.0	10.0	—	0.15	0.15	50/50	46/54	80/20	56.6	23.6	2.4
13	23.0	27.0	40.0	—	10.0	0.15	0.15	50/50	46/54	80/20	57.5	23.6	2.4
比較例 9	37.5	37.5	20.0	5.0	—	0.15	0.15	75/25	50/50	80/20	18.4	32.8	0.6

注1) ①～③の有効な数値範囲は、以下のとおりである。

①: 30/70～70/30

②: 25/75～75/25

③: 50/50～100/0

注2) ④～⑥の好ましい数値範囲は、以下のとおりである。

④: 20～80

⑤: 15～30

⑥: 1～3

表 4

実施例 番号	眼 用 レ ン ズ 材 料 の 特 性										
	透明性	表面 潤滑性	摩擦性 (動摩擦力 (N))	表面水濡れ性 (接触角(°))	柔軟性 (応力緩和率 (%))	耐汚染性 (脂質付着量 (mg/cm ²))	酸素透過性 (酸素透過係数 (DK _{0.2}))	含水率 (重量%)	屈折率 (-)	モノマー残留率(重量%)	
										NVP	SK5001
1	A	A	0.020	33	7	0.9	38	32	1.427	-	-
2	A	A	0.018	32	10	0.8	41	32	1.428	1.9	0.4
3	A	A	0.015	30	9	0.8	29	32	1.415	-	-
4	A	A	0.009	28	11	0.8	23	50	1.407	1.9	0.2
5	A	A	0.019	32	9	0.9	34	50	1.429	1.7	0.3
6	A	A	0.012	33	12	0.7	27	45	1.411	1.9	0.2
7	A	B	0.024	33	8	0.9	38	33	1.427	-	-
8	A	A	0.013	29	12	0.8	29	31	1.415	-	-
9	A	A	0.007	27	10	0.7	30	32	1.415	-	-
10	A	A	0.007	28	13	0.8	29	30	1.415	-	-

表 5

眼 用 レ ン ズ 材 料 の 特 性											
比較例 番号	透明性	表面 潤滑性	摩擦性 (動摩擦力 (N))	表面水濡れ性 (接触角(°))	柔軟性 (応力緩和率 (%))	耐汚染性 (脂質付着量 (mg/cm ²))	酸素透過性 (酸素透過係数 (DK _{0.2}))	含水率 (重量%)	屈折率 (-)	モノマー残留率(重量%)	
										NVP	SK5001
1	A	A	0.019	33	11	0.8	40	33	1.428	2.5	0.3
2	A	C	0.051	64	7	0.8	38	25	1.434	-	-
3	A	D	0.036	32	52	0.8	38	29	1.430	-	-
4	D	C	0.040	47	7	0.9	23	50	1.379	-	-
5	A	C	0.032	37	12	1.2	44	15	1.437	3.3	0.7
6	A	D	0.042	31	8	1.5	27	52	1.405	-	-
7	A	C	0.048	36	7	1.6	38	32	1.425	-	-
8	A	D	0.045	35	14	2.1	28	49	1.412	-	-

表 6

実施例 番号	眼 用 レ ン ズ 材 料 の 特 性										
	透明性	表面 潤滑性	摩擦性 (動摩擦係力 (N))	表面水濡れ性 (接触角(°))	柔軟性 (応力緩和率 (%))	耐汚染性 (脂質付着量 (mg/cm ²))	酸素透過性 (酸素透過係数 (DK _{0.2}))	含水率 (重量%)	屈折率 (-)	モノマー残留率(重量%)	
										NVP	SK5001
11	A	A	0.020	34	13	0.9	43	29	1.433	-	-
12	A	A	0.018	32	13	0.9	32	41	1.415	2.1	0.2
13	A	A	0.017	-	10	0.8	32	40	-	-	-
比較例 9	A	C	0.015	39	15	1.7	45	13	1.438	3.1	0.5

表 7

実施例 番号	眼 用 レ ン ズ 成 分 (部)										各成分の割合 (重量比)			重合性基の割合(モル比)		
	重 合 成 分							重合開始剤			① (A) + (B) / (C)	② (A) / (B)	③ (C-1) / (C-2)	④ α / γ	⑤ β / δ	⑥ $(\alpha / \gamma)/ (\beta / \delta)$
	SK6006	SK5001	NVP	DEAA	MMA	EDMA	AMA	Dar	ABI							
14	22.0	28.0	40.0	10.0	—	0.15	0.15	0.5	—	50/50	44/56	80/20	61.7	24.5	2.5	
15	22.0	28.0	38.8	10.0	1.2	0.15	0.15	0.5	—	50.6/49.4	44/56	79.5/20.5	60.3	28.9	2.1	
16	22.0	28.0	38.8	10.0	1.2	0.15	0.15	—	0.5	50.6/49.4	44/56	79.5/20.5	60.3	28.9	2.1	

注1) ①~③の有効な数値範囲は、以下のとおりである。

①: 30/70~70/30

②: 25/75~75/25

③: 50/50~100/0

注2) ④~⑥の好ましい数値範囲は、以下のとおりである。

④: 20~80

⑤: 15~30

⑥: 1~3

表 8

実施例番号	眼用レンズ材料の特性			
	透明性	表面潤滑性	ロックウェル硬度 (-)	切削性
14	A	A	-40	B
15	A	A	-20	A
16	A	A	-	A

表 4 および表 6 に示された結果から、実施例 1 ～ 1 3 で得られた本発明の眼用レンズ材料は、いずれも透明性および表面潤滑性にすぐれ、高酸素透過性、高屈折率および適切な含水率を有するほか、動摩擦力が 0 . 0 2 5 N 以下で低摩擦性であり、しかも応力緩和率が 1 3 % 以下で柔軟性および反撥性にすぐれ、脂質付着量が 1 m g / c m ² 未満で耐汚染性にすぐれ、接触角が 3 0 ° 前後で表面水濡れ性にすぐれるといった各種すぐれた特性を兼備しており、しかもモノマー残留率が、N - ビニルピロリドンが 2 重量 % 前後、トリス (トリメチルシロキシ) シリルプロピルメタクリレートが 0 . 3 重量 % 前後とかなり低いものであることがわかる。したがって、実施例 1 ～ 1 3 で得られた本発明の眼用レンズ材料は、いずれも眼用レンズ用の材料としてきわめて好適なものであることがわかる。

これに対して、表 5 および表 6 に示された結果から、比較例 1 ～ 9 で得られた眼用レンズ材料は、いずれも表面潤滑性に劣るほか、透明性に劣っていたり、摩擦性が高い、柔軟性に劣る、耐汚染性に劣る、表面水濡れ性に劣る、とくに N - ビニルピロリドンの残留率が高いなど、

本発明の材料のごとき各種すぐれた特性を兼備したものではなく、眼用レンズ用の材料として不適切なものであることがわかる。

また表 8 に示された結果から、実施例 14 ～ 16 で得られた本発明の眼用レンズ材料は、いずれも透明性および表面潤滑性にすぐれ、ロックウェル硬度が大きく、切削性にもすぐれたものであることがわかる。したがって、実施例 14 ～ 16 で得られた本発明の眼用レンズ材料は、いずれも眼用レンズ用の材料としてきわめて好適なものであることがわかる。

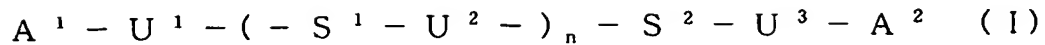
産業上の利用可能性

本発明の眼用レンズ材料は、高酸素透過性および高機械的強度を有することに加え、さらに表面水濡れ性にすぐれ、かつ表面が低摩擦性であるといった特性を兼備したものである。

したがって、本発明の眼用レンズ材料は、たとえばコンタクトレンズ、眼内レンズ、人工角膜などに好適に使用することができる。

請求の範囲

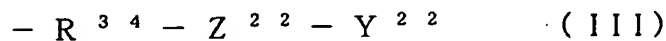
1. (A) 一般式 (I) :



[式中、 A^1 は一般式 (II) :

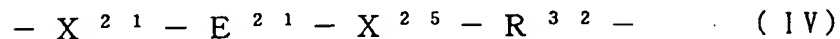


(式中、 Y^{21} はアクリロイル基、ビニル基またはアリル基、 Z^{21} は酸素原子または直接結合、 R^{31} は直接結合または炭素数1~12の直鎖状、分岐鎖もしくは芳香環を有するアルキレン基を示す)で表わされる基;
 A^2 は一般式 (III) :



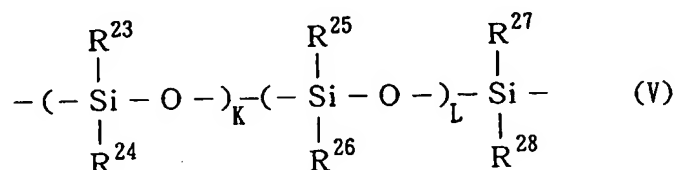
(式中、 Y^{22} はアクリロイル基、ビニル基またはアリル基、 Z^{22} は酸素原子または直接結合、 R^{34} は直接結合または炭素数1~12の直鎖状、分岐鎖もしくは芳香環を有するアルキレン基を示す)で表わされる基
(ただし、一般式 (II) 中の Y^{21} および一般式 (III) 中の Y^{22} は同一であってもよく、異なってもよい) ;

U^1 は一般式 (IV) :



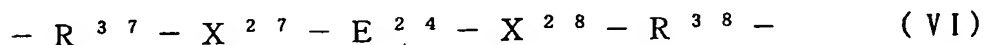
(式中、 X^{21} および X^{25} はそれぞれ独立して直接結合、酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、 E^{21} は $-NHCO-$ 基(ただし、この場合、 X^{21} は直接結合であり、 X^{25} は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 E^{21} は X^{25} とウレタン結合を形成している)、 $-CONH-$ 基(ただし、この場合、 X^{21} は酸素原子またはアルキレングリコール基で

あり、 X^{25} は直接結合であり、 E^{21} は X^{21} とウレタン結合を形成している) または飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の2価の基(ただし、この場合、 X^{21} および X^{25} はそれぞれ独立して酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、 E^{21} は X^{21} および X^{25} のあいだで2つのウレタン結合を形成している); R^{32} は炭素数1~6の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基を示す) で表わされる基;
 S^1 および S^2 はそれぞれ独立して一般式(V):



(式中、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} および R^{28} はそれぞれ独立して炭素数1~6のアルキル基、フッ素置換されたアルキル基またはフェニル基、 K は1~1500の整数、 L は0または1~1499の整数であり、 $K+L$ は1~1500の整数である) で表わされる基;

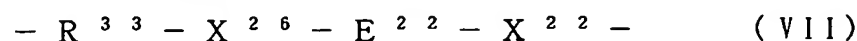
U^2 は一般式(VI):



(式中、 R^{37} および R^{38} はそれぞれ独立して炭素数1~6の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基;
 X^{27} および X^{28} はそれぞれ独立して酸素原子またはアルキレングリコール基;
 E^{24} は飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の2価の基(ただし、この場合、

E^{24} は X^{27} および X^{28} のあいだで 2 つのウレタン結合を形成している) で表わされる基;

U^3 は一般式 (VII) :



(式中、 R^{33} は炭素数 1 ~ 6 の直鎖状または分岐鎖を有するアルキレン基、 X^{22} および X^{26} はそれぞれ独立して直接結合、酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、 E^{22} は $-NHCO-$ 基 (ただし、この場合、 X^{22} は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 X^{26} は直接結合であり、 E^{22} は X^{22} とウレタン結合を形成している)、 $-CONH-$ 基 (ただし、この場合、 X^{22} は直接結合であり、 X^{26} は酸素原子またはアルキレングリコール基であり、 E^{22} は X^{26} とウレタン結合を形成している) または飽和もしくは不飽和脂肪族系、脂環式系および芳香族系の群から選ばれたジイソシアネート由来の 2 価の基 (ただし、この場合、 X^{22} および X^{26} はそれぞれ独立して酸素原子およびアルキレングリコール基から選ばれ、 E^{22} は X^{22} および X^{26} のあいだで 2 つのウレタン結合を形成している) で表わされる基;

n は 0 または 1 ~ 10 の整数を示す] で表わされる重合性基が 1 個以上のウレタン結合を介してシロキサン主鎖に結合しているポリシロキサンマクロモノマー、

(B) シリコン含有アルキルメタクリレート、

(C) N-ビニルピロリドン (C-1) と、該 N-ビニルピロリドン (C-1) 以外のアクリロイル基、ビニル基またはアリル基を含有した親水性モノマー (C-2) とからなる親水性モノマー、

(D) アルキル (メタ) アクリレートおよびフッ素含有アルキル (メタ) アクリレートから選ばれた少なくとも1種のモノマー、ならびに

(E) アクリロイル基、ビニル基およびアリル基から選ばれた少なくとも1種の基とメタクリロイル基とを含む架橋性モノマー (E-1) と、少なくとも2つのメタクリロイル基を含む架橋性モノマー (E-2) とからなる低分子架橋性モノマー

を主成分とした重合成分を加熱および/または紫外線照射して鋳型法にて重合させた共重合体からなり、前記ポリシロキサンマクロモノマー (A) およびシリコン含有アルキルメタクリレート (B) の合計と親水性モノマー (C) との割合 [(A) および (B) の合計 / (C) (重量比)] が 30 / 70 ~ 70 / 30 であり、かつ

前記ポリシロキサンマクロモノマー (A) とシリコン含有アルキルメタクリレート (B) との割合 [(A) / (B) (重量比)] が 25 / 75 ~ 75 / 25 であり、かつ

前記 N-ビニルピロリドン (C-1) と親水性モノマー (C-2) との割合 [(C-1) / (C-2) (重量比)] が 50 / 50 ~ 100 / 0 であり、かつ

前記モノマー (D) の量が重合成分の 0 ~ 2.0 重量%である眼用レンズ材料。

2. 共重合体の少なくとも一方の面またはその一部を切削してなる請求の範囲第1項記載の眼用レンズ材料。
3. 共重合体が、重合成分を加熱温度 50 ~ 150℃ および加熱時間 10 ~ 120 分間の条件で加熱して重合

させたものであり、

重合成分が、ポリシロキサンマクロモノマー (A) およびシリコン含有アルキルメタクリレート (B) の合計と親水性モノマー (C) との割合 [(A) および (B) の合計 / (C) (重量比)] が 30 / 70 ~ 70 / 30 であり、かつ

ポリシロキサンマクロモノマー (A) とシリコン含有アルキルメタクリレート (B) との割合 [(A) / (B) (重量比)] が 25 / 75 ~ 75 / 25 であり、かつ N-ビニルピロリドン (C-1) と親水性モノマー (C-2) との割合 [(C-1) / (C-2) (重量比)] が 50 / 50 ~ 100 / 0 であり、かつ

前記モノマー (D) の量が重合成分の 0 ~ 20 重量% のものである請求の範囲第 1 項記載の眼用レンズ材料。

4. 共重合体が、重合成分を波長 365 nm における紫外線照度 0.5 ~ 20 mW / cm² および紫外線照射時間 1 ~ 80 分間の条件で紫外線照射して重合させたものであり、

重合成分が、ポリシロキサンマクロモノマー (A) およびシリコン含有アルキルメタクリレート (B) の合計と親水性モノマー (C) との割合 [(A) および (B) の合計 / (C) (重量比)] が 40 / 60 ~ 70 / 30 であり、かつ

ポリシロキサンマクロモノマー (A) とシリコン含有アルキルメタクリレート (B) との割合 [(A) / (B) (重量比)] が 35 / 65 ~ 75 / 25 であり、かつ N-ビニルピロリドン (C-1) と親水性モノマー (C-2) との割合 [(C-1) / (C-2) (重量比)]

が $50/50 \sim 100/0$ であり、かつ
前記モノマー (D) の量が重合成分の $0 \sim 20$ 重量%
のものである請求の範囲第1項記載の眼用レンズ材料。

5. 低分子架橋性モノマー (E) の量がポリシロキサン
マクロモノマー (A)、シリコン含有アルキルメタク
リレート (B)、親水性モノマー (C) およびモノマ
ー (D) の合計量 100 重量部に対して 1 重量部以下
であり、かつ

親水性モノマー (C) およびモノマー (D) 中のアク
リロイル基のモル数とビニル基のモル数とアリル基の
モル数との合計量 α 、

シリコン含有アルキルメタクリレート (B) およびモ
ノマー (D) 中のメタクリロイル基のモル数の合計量
 β 、

ポリシロキサンマクロモノマー (A) および低分子架
橋性モノマー (E) 中のアクリロイル基のモル数とビ
ニル基のモル数とアリル基のモル数との合計量 γ 、

低分子架橋性モノマー (E) 中のメタクリロイル基の
モル数の合計量 δ が

$$\alpha / \gamma = 20 \sim 80, \text{ かつ}$$

$$\beta / \delta = 15 \sim 30$$

を満足する請求の範囲第1項記載の眼用レンズ材料。

6. 前記 (α / γ) と (β / δ) との割合が

$$(\alpha / \gamma) / (\beta / \delta) = 1 \sim 3$$

である請求の範囲第5項記載の眼用レンズ材料。

7. 架橋性モノマー (E-1) がアリルメタクリレート
であり、かつ架橋性モノマー (E-2) がエチレング
リコールジメタクリレートである請求の範囲第1項記

載の眼用レンズ材料。

8. 親水性モノマー（C-2）がアクリルアミド、N，N-ジメチルアクリルアミド、N，N-ジエチルアクリルアミド、N-イソプロピルアクリルアミド、アクリロイルモルホリン、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ジメチルアミノエチルアクリレートおよび酢酸ビニルから選ばれた少なくとも1種である請求の範囲第1項記載の眼用レンズ材料。
9. 親水性モノマー（C-2）がN，N-ジメチルアクリルアミドである請求の範囲第1項記載の眼用レンズ材料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/02221

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ G02C7/04, A61L27/14, A61F2/16, C08J5/00, C08F290/06,
C08F2/48 // C08L55:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ G02C7/04, A61L27/14, A61F2/16, C08J5/00, C08F290/06,
C08F2/48 // C08L55:00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, 584826, A2 (Menicon Co., Ltd.), 02 March, 1994 (02.03.94), Full text & JP, 6-121826, A Full text & US, 5346946, A	1-9
A	EP, 937998, A2 (Menicon Co., Ltd.), 25 August, 1999 (25.08.99), Full text & JP, 11-228643, A Full text	1-9
A	JP, 3-228014, A (Menicon Co., Ltd.), 09 October, 1991 (09.10.91), Full text (Family: none)	1-9
A	US, 5556929, A (Menicon Co., Ltd.), 17 September, 1996 (17.09.96), Full text & JP, 7-90030, A Full text	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 June, 2001 (19.06.01)

Date of mailing of the international search report
26 June, 2001 (26.06.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/02221

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, 657751, A2 (Menicon Co., Ltd.), 14 June, 1995 (14.06.95), Full text & JP, 7-157523, A Full text & US, 5519070, A	1-9
A	JP, 8-208761, A (Menicon Co., Ltd.), 13 August, 1996 (13.08.96), Full text (Family: none)	1-9
A	EP, 796723, A1 (Menicon Co., Ltd.), 24 September, 1997 (24.09.97), Full text & WO, 97/09169, A1 Full text & US, 5855825, A	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ G02C7/04, A61L27/14, A61F2/16, C08J5/00, C08L290/06, C08F2/48//C08L55:00		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ G02C7/04, A61L27/14, A61F2/16, C08J5/00, C08L290/06, C08F2/48//C08L55:00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
日本国実用新案公報 1926-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2001年 日本国登録実用新案公報 1994-2001年 日本国実用新案登録公報 1996-2001年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	EP, 584826, A2 (Menicon Co., Ltd.) 2. 3月. 1994 (02. 03. 94) 全文 & JP, 6-121826, A, 全文 & US, 5346946, A	1-9
A	EP, 937998, A2 (Menicon Co., Ltd.) 25. 8月. 1999 (25. 08. 99) 全文 & JP, 11-228643, A, 全文	1-9
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	19. 06. 01	国際調査報告の発送日
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 横井 康真
		2V 9611 電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 3-228014, A (株式会社メニコン) 9. 10月. 1991 (09. 10. 91) 全文 (ファミリーなし)	1-9
A	US, 5556929, A (Menicon Co., Ltd.) 17. 9月. 1996 (17. 09. 96) 全文 & JP, 7-90030, A, 全文	1-9
A	EP, 657751, A2 (Menicon Co., Ltd.) 14. 6月. 1995 (14. 06. 95) 全文 & JP, 7-157523, A, 全文 & US, 5519070, A	1-9
A	JP, 8-208761, A (株式会社メニコン) 13. 8月. 1996 (13. 08. 96) 全文 (ファミリーなし)	1-9
A	EP, 796723, A1 (Menicon Co., Ltd.) 24. 9月. 1997 (24. 09. 97) 全文 & WO, 97/09169, A1, 全文 & US, 5855825, A	1-9